

**EUR 4700 f**

ASSOCIATION  
Communauté Européenne de l'Energie Atomique - EURATOM  
Commissariat à l'Energie Atomique - C.E.A.

**NIVEAUX DE CONTAMINATION  
RADIOACTIVE DU MILIEU AMBIANT  
ET DE LA CHAINE ALIMENTAIRE**

**Rapport annuel 1970**

**LIBRARY**  
EUROPEAN COMMUNITY  
INFORMATION SERVICE  
WASHINGTON, D. C.

**1971**



**Rapport établi au C.E.A.  
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, France  
Département de la Protection Sanitaire**

**Association N° 003-63-10 PSAF**

## AVERTISSEMENT

Le présent document a été élaboré sous les auspices de la Commission des Communautés Européennes.

Il est précisé que la Commission des Communautés Européennes, ses contractants, ou toute personne agissant en leur nom :

ne garantissent pas l'exactitude ou le caractère complet des informations contenues dans ce document, ni que l'utilisation d'une information, d'un équipement, d'une méthode ou d'un procédé quelconques décrits dans le présent document ne porte pas atteinte à des droits privatifs;

n'assument aucune responsabilité pour les dommages qui pourraient résulter de l'utilisation d'informations, d'équipements, de méthodes ou procédés décrits dans le présent document.

Ce rapport est vendu dans les bureaux de vente indiqués en 4<sup>e</sup> page de couverture

au prix de FF 7,75

FB 70,—

DM 5,10

Lit. 870

Fl. 5,10

**Prière de mentionner, lors de toute commande, le numéro EUR et le titre qui figurent sur la couverture de chaque rapport.**

Imprimé par Guyot s.a., Bruxelles  
Luxembourg, octobre 1971

Le présent document a été reproduit à partir de la meilleure copie disponible.

45.71 f  
621.397 : (CST 6)

**EUR 4700 f**

ASSOCIATION  
Communauté Européenne de l'Energie Atomique - EURATOM  
Commissariat à l'Energie Atomique - C.E.A.

**NIVEAUX DE CONTAMINATION  
RADIOACTIVE DU MILIEU AMBIANT  
ET DE LA CHAÎNE ALIMENTAIRE**

**Rapport annuel 1970**

**1971**



Rapport établi au C.E.A.  
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses, France  
Département de la Protection Sanitaire

Association N° 003-63-10 PSAF

## RÉSUMÉ

Pendant l'année 1970, l'Association EURATOM/C.E.A. a poursuivi ses travaux relatifs à la pollution radioactive du milieu ambiant et de la chaîne alimentaire. Elle a approfondi les recherches de facteurs de transfert des sources de pollution à l'homme amorcées en 1969 et abordé, en outre, les problèmes posés par les pollutions associées à la pollution radioactive.

En biologie humaine, l'étude du métabolisme du strontium et de sa rétention dans le squelette est parvenue au stade de l'interprétation des données et de la recherche d'un modèle.

Les recherches concernant les transferts de la contamination atmosphérique des végétaux par voie humide, par le strontium et le césium sont en voie d'achèvement. L'étude des transferts du ruthénium, du cobalt et du zinc à partir des eaux continentales est très avancée.

Les problèmes posés par les contaminations chimiques associées aux contaminations radioactives ont été abordés avec l'étude du fluor et des composés fluorés.

Enfin, dans le cadre des études de synthèse, un essai d'estimation des risques de contamination interne de l'homme par la pollution radioactive des eaux a été effectué.

## MOTS-CLÉS

CONTAMINATION	IODINE ISOTOPES
ENVIRONNEMENT	DOSIMETRY
FOOD CHAIN	HYDROLOGY
RADIATION SOURCES	FALLOUT
RADIOACTIVITY	AIR
SAFETY	WATER
INHALATION	GROUND WATER
INGESTION	SOILS
STANDARDS	CESIUM 137
METABOLISM	MOCKUP
LUNGS	CHEMICALS
BONES	FLUORINE
BONE MARROW	FLUORINE COMPOUNDS
INTESTINE	MAN
STRONTIUM 90	PLANTS
IODINE 131	

**EUR 4700 f**

**LEVELS OF RADIOACTIVE CONTAMINATION OF THE ENVIRONMENT  
AND THE FOOD CHAIN - Annual Report 1970**

Association : European Atomic Energy Community - EURATOM  
Commissariat à l'Energie Atomique - CEA

Work performed at the CEA  
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (France)  
Health Protection Department  
Association No. 003-63-10 PSAF  
Luxembourg, October 1971 - 56 Pages - 8 Figures - B.Fr. 70.—

During 1970 the EURATOM-CEA Association continued its work on the radioactive contamination of the environment and the food chain. Its research on the factors transferring contamination sources to man, begun in 1969, was intensified, as well as the study of the problems presented by contamination associated with radioactive contamination.

In the field of human biology, work on the metabolism of strontium and its retention in the skeleton has reached the stage of data interpretation and the study of a model.

Comm  
à l'E  
l'éta  
et de

**EUR 4700 f**

**LEVELS OF RADIOACTIVE CONTAMINATION OF THE ENVIRONMENT  
AND THE FOOD CHAIN - Annual Report 1970**

Association : European Atomic Energy Community - EURATOM  
Commissariat à l'Energie Atomique - CEA

Work performed at the CEA  
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (France)  
Health Protection Department  
Association No. 003-63-10 PSAF  
Luxembourg, October 1971 - 56 Pages - 8 Figures - B.Fr. 70.—

During 1970 the EURATOM-CEA Association continued its work on the radioactive contamination of the environment and the food chain. Its research on the factors transferring contamination sources to man, begun in 1969, was intensified, as well as the study of the problems presented by contamination associated with radioactive contamination.

In the field of human biology, work on the metabolism of strontium and its retention in the skeleton has reached the stage of data interpretation and the study of a model.

ce con

l'Assoc

- les mc  
la chaîr  
milieu a  
en résult

- les va  
ces modèl  
conditions

entre la  
Français  
mettant  
leu ambiant

adre de

e de

essant  
le  
qui

re dans

**EUR 4700 f**

**LEVELS OF RADIOACTIVE CONTAMINATION OF THE ENVIRONMENT  
AND THE FOOD CHAIN - Annual Report 1970**

Association : European Atomic Energy Community - EURATOM  
Commissariat à l'Energie Atomique - CEA

Work performed at the CEA  
Centre d'Etudes Nucléaires de Fontenay-aux-Roses (France)  
Health Protection Department  
Association No. 003-63-10 PSAF  
Luxembourg, October 1971 - 56 Pages - 8 Figures - B.Fr. 70.—

During 1970 the EURATOM-CEA Association continued its work on the radioactive contamination of the environment and the food chain. Its research on the factors transferring contamination sources to man, begun in 1969, was intensified, as well as the study of the problems presented by contamination associated with radioactive contamination.

In the field of human biology, work on the metabolism of strontium and its retention in the skeleton has reached the stage of data interpretation and the study of a model.

ce rapport

- les donné  
du milieu à  
un progrès :  
plus précise

- les études  
zinc dans le  
et très utile  
aquatiques et

- la même mét  
aux contaminat  
dans le but d'établir des niveaux de protection.

is

ion  
quent  
on

avec quelques adaptations,  
associées aux contaminations radioactives

Nous sommes heureux de souligner la contribution  
qui est ainsi apportée par l'Association à la solution du problème  
plus général de la pollution de l'environnement.

P. RECHT  
Vice-Président du Comité  
de Gestion

H. JAMMET  
Président du Comité  
de Gestion

Work on the transfer of atmosphere contamination of plants via wet media is now approaching completion and the relating to the transfer of cobalt and zinc from continental waters is in a very active state.

The problem arising from chemical active contamination was

Food

TABLE DES MATIERES

Préface	3
Introduction	9
1 Paramètres biologiques de l'homme	11
1-1 Données anatomiques de l'homme	12
1-2 Etude du métabolisme du strontium	12
1-3 Etude du métabolisme de l'iode	17
1-4 Enquêtes alimentaires	17
1-5 Dosimétrie du TGI chez l'enfant	18
2 Les facteurs de transfert de la contamination radioactive des sources de pollution à l'homme	19
2-1 Les transferts de la contamination à partir de l'atmosphère	20
2-2 Les transferts de la contamination radioactive résultant de la pollution des eaux	25
2-3 Les transferts de la contamination radioactive à partir du sol	43
3 Etudes des contaminations chimiques associées aux contaminations radioactives	45
3-1 Analyse des problèmes de protection posés par le fluor et les composés fluorés .	46
4 Etudes de synthèse	49
4-1 Estimation des risques de contamination interne de l'homme résultant de la pollution radioactive des eaux	50
4-2 Estimation des risques de contamination interne de l'homme résultant de la pollution chimique des eaux .	51
<u>CONCLUSIONS</u>	
Annexe I - Etablissements et organismes participant aux travaux de l'Association.	54
Annexe II - Liste des publications 1970	55

LISTE DES FIGURES ET TABLEAUX .

- Fig 1            Comparaison des distributions de la concentration du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions ( Sr par g d'os frais ).
- Fig 2            Comparaison des distributions de la contamination du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions (Sr par g de Ca)
- Fig 3            Comparaison des distributions de la concentration du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions (Sr par g de cendres)
- Fig 4            Comparaison des moyennes et écarts de concentration du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions .
- Fig 5            Mesures de strontium stable à Udine et dans les autres régions.
- Fig 6            Concentration du  $^{90}\text{Sr}$  dans les vertèbres (  $\mu\text{Ci/g Ca}$  )
- Fig 7            Type d'étude du régime des pluies
- Fig 8            Activités spécifiques et activités totales apportées par une pluie de h mm de pluie .
- Fig 9            Essai d'application du modèle à la contamination de l'herbe ( stade jeune ) par la pluie (  $^{90}\text{Sr}$ .)



TABLEAU I	Contamination en Strontium et Cesium lors d'Irrigation pas aspersion
II	Facteurs de transfert eau d'Irrigation - végétaux, rapport $\frac{\text{activité par g matière sèche}}{\text{activité par g d'eau}}$
III	Complexes du ruthenium
IV	Complexes du nitrosylruthenium - Constantes (pk) de la réaction $\text{Ru NOCl} + n\text{X} \rightarrow \text{Ru NOX}_n$
V	Essais d'échanges d'ions sur divers dérivés du ruthenium Ru fixé en % du Ru total.
VI	Facteurs de transferts eau animal entier après 5 jours ( température de l'eau 15° C ) intervalle de confiance . pour P = 95% )
VII	Contamination en ruthenium de tomates irriguées par aspersion Facteurs de transfert ( ordre de grandeur )
VIII	Contamination de la laitue avant et après lavage à l'eau non contaminée - valeur des facteurs de transfert eau plantes entières ( ordre de grandeur )
IX	Paramètres de transfert du radiocobalt , de l'eau aux organismes aquatiques et irrigués .
X	Contamination des poissons par $^{65}\text{Zn}$ - facteurs de transfert eau organismes entiers .
XI	Influence des ions $\text{Cd}^{++}$ dans l'eau sur la contamination de <u>lépomis</u> par $^{65}\text{Zn}$ - Animaux nourris avec un aliment synthétique avec ou sans zinc ajouté ( activités en $^{65}\text{Zn}$ exprimées en coups par g et par minute )
XIII	Répartition en Zinc dans <u>Carassius</u> après 29 jours de contamination.
XIII	Répartition en Zinc dans <u>Carassius</u> après 29 jours de contamination et 14 jours de séjour en eau inactive .
XIV	Répartition en Zinc dans <u>lépomis</u> après 55 jours de contamination
XV	Répartition du Zinc dans <u>lépomis</u> après contamination et 42 jours en eau inactive .
XVI	Cinétique de la perte en $^{65}\text{Zn}$ chez <u>lépomis</u> après ingestion unique d'un aliment contaminé .

COMPOSITION DU COMITE DE GESTION

-----

Président	Dr JAMMET
Vice-Président	Dr RECHT
Secrétaire	Mr BRESSON (C.E.A. )
Membre	M. VAN HOECK ( EURATOM )
Membre	Mr de SADELEER ( EURATOM )
Membre	Mr ROGNON ( C.E.A. )

COMPOSITION DU GROUPE DE RECHERCHES

-----

Chef du Groupe	G. LACOURLY
Biologie humaine	L. KARHAUSEN
Etudes atmosphériques	D. VON HOBE Jusqu'au 31 mars 1970
Agronomie	J. LEHR
Ecologie	R. BITTEL
Physico-chimie	B. VAUBERT
Documentation	R. HAMMER
	L. ZANINI
Secrétariat	Mme G. DEVENON

## INTRODUCTION \*)

Le présent document rend compte de l'activité du groupe de recherche de l'Association EURATOM/CEA, au cours de l'année 1970.

L'objet du contrat consiste à rassembler et éventuellement élaborer les données et les méthodes nécessaires pour évaluer, en un point quelconque du territoire de la Communauté Européenne, et en fonction des paramètres qui déterminent les caractéristiques locales, les limites acceptables de la pollution radioactive du milieu ambiant et de la chaîne alimentaire, conformément aux recommandations de la Commission Internationale de Protection Radiologique.

En 1970, l'Association a développé ses activités dans tous les secteurs considérés comme prioritaires. Accentuant le mouvement déjà amorcé l'année dernière, un effort marqué a été porté sur la recherche des facteurs de transfert des sources de pollution à l'homme, en particulier sur ceux concernant le sol et l'eau.

Il convient de noter en outre que l'étude des problèmes posés par les pollutions associées à la pollution radioactive a été abordée dans le même esprit et avec les mêmes méthodes.

Ce rapport comprend cinq parties.

La première partie est consacrée aux problèmes de Biologie humaine. Parmi ceux-ci, l'étude du métabolisme du strontium et de sa rétention dans le squelette est parvenue au stade de l'interprétation des données et de la recherche d'un modèle.

La deuxième partie traite des facteurs de transfert de la contamination radioactive des sources de pollution à l'homme. L'étude de la contamination atmosphérique des végétaux par voie humide par le strontium et le césium est en <sup>voie</sup> d'achèvement, de même que l'étude du comportement du césium dans les sols. L'étude des transferts de la contamination à partir de la pollution des eaux apporte des résultats intéressants relatifs au ruthénium, au cobalt et au zinc.

Dans une troisième partie sont abordés les problèmes posés par les contaminations chimiques associées aux contaminations radioactives, avec l'étude du fluor.

La quatrième partie enfin, consacrée aux études de synthèse, comporte un essai d'estimation des risques de contamination interne de l'homme résultant de la pollution radioactive des eaux.

---

\*) Manuscrit reçu le 8 juin 1971



P R E M I E R E     P A R T I E

-----  
PARAMETRES BIOLOGIQUES DE L'HOMME  
-----

La recherche des données anatomiques et physiologiques de l'homme nécessaires au calcul des doses d'irradiation délivrées à l'organisme à la suite de l'ingestion de radionucléides a été poursuivie et a porté principalement sur les points suivants :

#### 1.1. Données anatomiques de l'homme -

Ce travail se poursuit en collaboration avec le Département de Health Physics du Oak Ridge National Laboratory ( Tennessee ). Les chapitres suivants ont été révisés et complétés : le système respiratoire, le système digestif, la moelle osseuse et le squelette.

Un rapport condensé sur l'homme de référence européen est en voie d'achèvement. D'une façon générale, on y retrouvera les mêmes valeurs que celles de la CIPR, mais des remarques seront introduites lorsqu'il apparaîtra nécessaire de comparer les valeurs observées dans diverses régions d'Europe à celles, arbitraires, de l'homme standard.

#### 1.2. Etude du métabolisme du strontium - ( collaboration de l'Université de Pavie, Professeur Lanzola ) -

Le programme d'échantillonnage a été interrompu en juin 1970. Une première analyse a été effectuée portant sur les enfants de 0 à 19 jours. La principale difficulté tient au nombre insuffisant des échantillons.

Il apparaît que la concentration du  $^{90}\text{Sr}$  et du calcium stable, rapportées à l'os frais ne montrent pas de différences significatives entre les quatre régions suivantes : Milano, Roma, Bari, Napoli. On est donc en droit, en première approximation, de considérer que ces échantillons proviennent d'une population homogène. Par contre, Udine se distingue de ces quatre régions.

L'effet des différentes variables relevées sur la concentration du  $^{90}\text{Sr}$  par rapport au calcium stable, par rapport aux cendres et par rapport au poids de l'os frais, a été étudié.

Le rapport  $^{90}\text{Sr/g}$ . Ca montre une dispersion plus grande que les rapports  $^{90}\text{Sr/g}$ . cendres et  $^{90}\text{Sr/g}$ . os frais.

Le sexe ne paraît pas être une variable significative, mais il est possible que l'analyse d'un plus grand nombre d'échantillons permette d'établir une différence due au sexe.

Les différences des valeurs observées au cours des trois premières années de prélèvement ne sont pas significatives au seuil de 5% et autorisent leur groupement éventuel en vue de leur traitement.

Les valeurs observées ont été divisées en deux catégories d'âge : 1-2 jours ( y compris les mort-nés ), et 2 à 12 jours. On n'a pas trouvé de différence significative entre les deux classes d'âge. Les trois taux de contamination calculés montrent des valeurs plus élevées à Udine que dans les cinq autres régions et ceci se vérifie au seuil de probabilité de 95%. Par ailleurs, les dispersions peuvent être considérées comme normales, moyennes et médianes étant très voisines.

Les figures 1 - 3 montrent ces distributions pour la région d'Udine et pour le pool des quatre autres régions. La figure 1 montre le rapport strontium-90/gramme d'os frais. La figure 2 montre le rapport strontium-90/gramme de calcium stable. La figure 3 montre le rapport strontium-90 par gramme de cendres.

La figure 4 montre les moyennes et les écarts par rapport à la moyenne pour les trois rapports. Le trait supérieur représente la région de Udine, le trait inférieur les quatre autres régions.

Enfin, des mesures de strontium stable ont été effectuées sur une fraction des échantillons par le Dr E.I. Hamilton du Medical Research Council ( Royal Marsden Hospital, Belmont, UK ).

Certains résultats sont présentés dans la figure 5. Il apparaît que les valeurs observées à Udine pour le strontium stable sont particulièrement basses. Notre étude montre donc qu'il existe pour les valeurs étudiées une relation inverse entre la concentration de  $^{90}\text{Sr}$  et celle du Sr stable.

Ces études méritent donc d'être poursuivies.

Des informations sont nécessaires sur l'alimentation des femmes enceintes et notamment sur les suppléments de calcium par voie orale.

Une mesure de strontium stable dans le régime alimentaire et dans l'eau de boisson est nécessaire.

Les enquêtes alimentaires effectuées par l'Association suggèrent que les quantités de strontium stable sont particulièrement basses au Friuli, mais ces chiffres n'ont qu'une valeur indicative en l'absence de mesures. Pour mieux apprécier l'influence du strontium stable ingéré sur la rétention du radiostrontium dans les os, il est envisagé :

1/ de faire des mesures de Sr radioactif et stable dans les os des bovidés à Milan et à Udine,

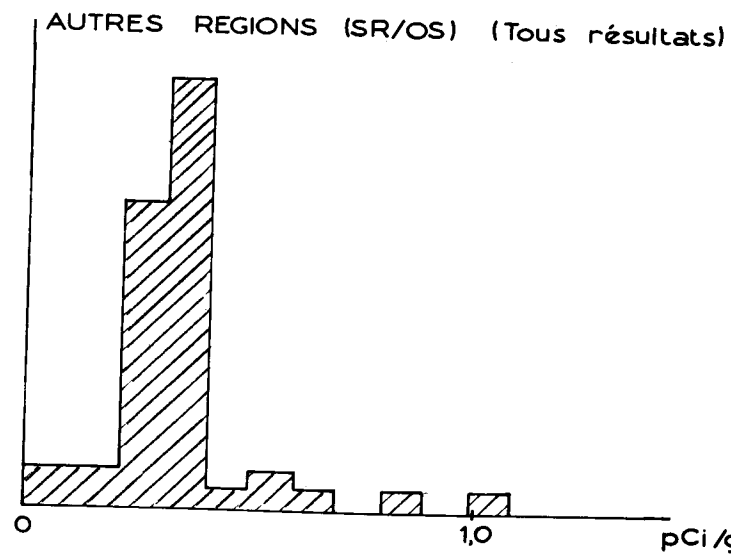
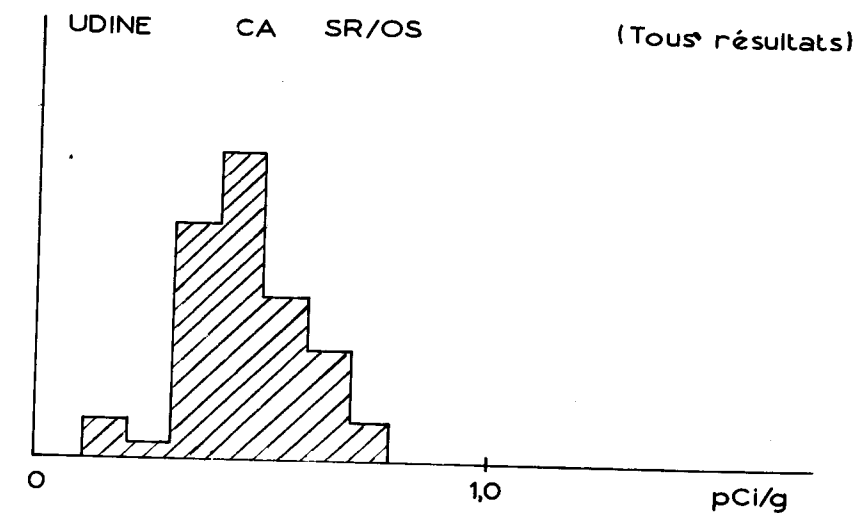
2/ de mesurer le contenu en Sr stable et en calcium dans le régime alimentaire d'un service d'obstétrique à Milan et à Udine.

Le prélèvement d'échantillons de vertèbres sur des adultes, réalisé à Milan en 1967 dans le cadre de ce programme, a fait d'autre part l'objet d'une étude visant à tester le modèle de rétention basé sur la distinction entre " os stabilisé " et " calcium échangeable " et mis au point à partir des résultats de mesures effectuées en France, par le Département de Protection Sanitaire du Commissariat à l'Energie Atomique.

Pour cela, on a fait une évaluation approximative de la quantité de  $^{90}\text{Sr}$  de 1960 à 1967, à partir du rapport des quantités de  $^{90}\text{Sr}$  contenues dans le régime alimentaire et dans le lait.

L'application du modèle précité a permis de tracer l'évolution de la charge osseuse des vertèbres jusqu'en 1967 ( fig.6 ) ( communication de Mme Garnier à Grenoble ).

Les mesures effectuées sur les vertèbres d'individus décédés en 1967 donnent un résultat en accord avec la charge calculée pour cette même année, mais il serait souhaitable d'avoir des points



FIG/ 1 - Comparaison des distributions de la concentration du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions ( p/g d'os frais )

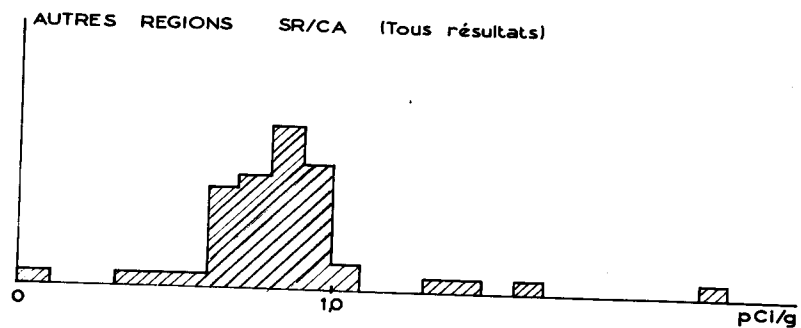
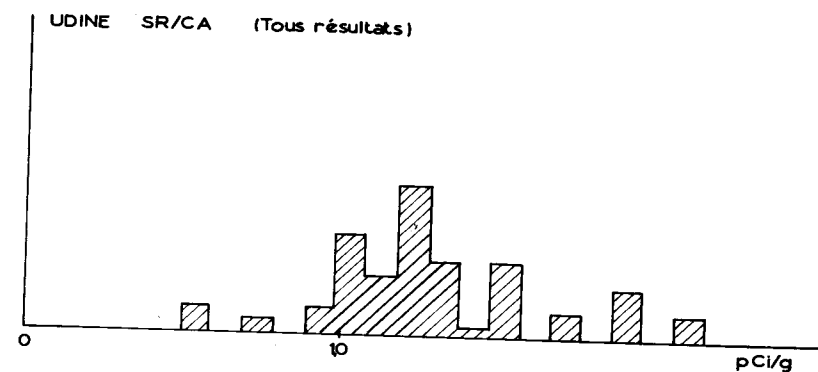


FIG 2 / Comparaison de la distribution de la concentration de  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions ( Sr par g de Ca )



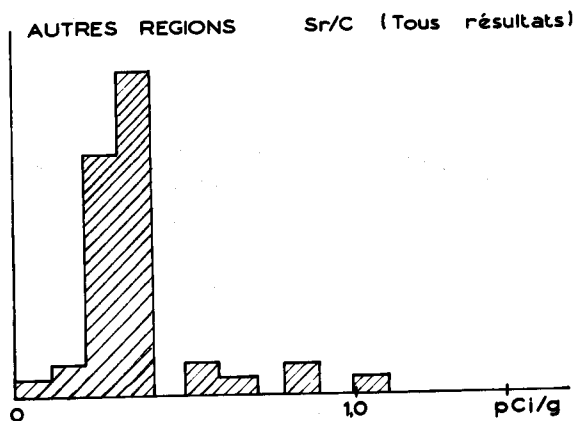
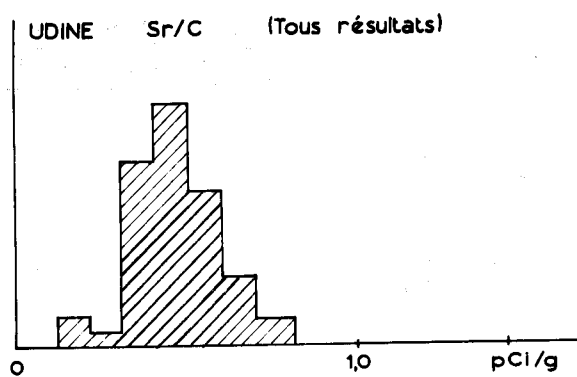


FIG 3 / Comparaison des distributions de la concentration de  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions ( Sr p/g de cendres )

(23)

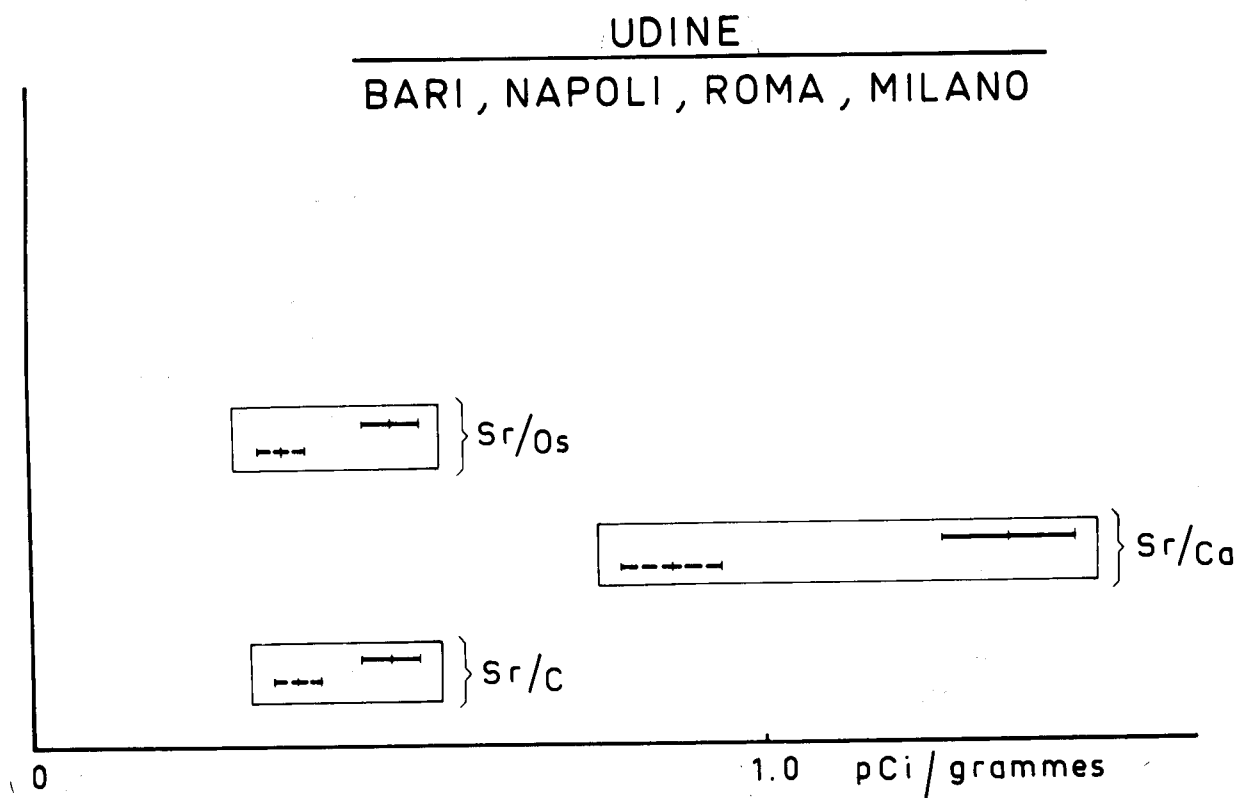


Fig 4: Comparaison des moyennes et écarts de concentration du  $^{90}\text{Sr}$  à Udine et dans les autres régions.

# UDINE      AUTRES RÉGIONS

Enfants	63,3	157
jusqu'à un mois	N=15	N=41
Enfants au dessus	90	174
de un mois et adultes	N = 8	N = 23

## STRONTIUM STABLE ppm

FIG 5 /  
Mesures du Sr stable à Udine et dans les autres régions .

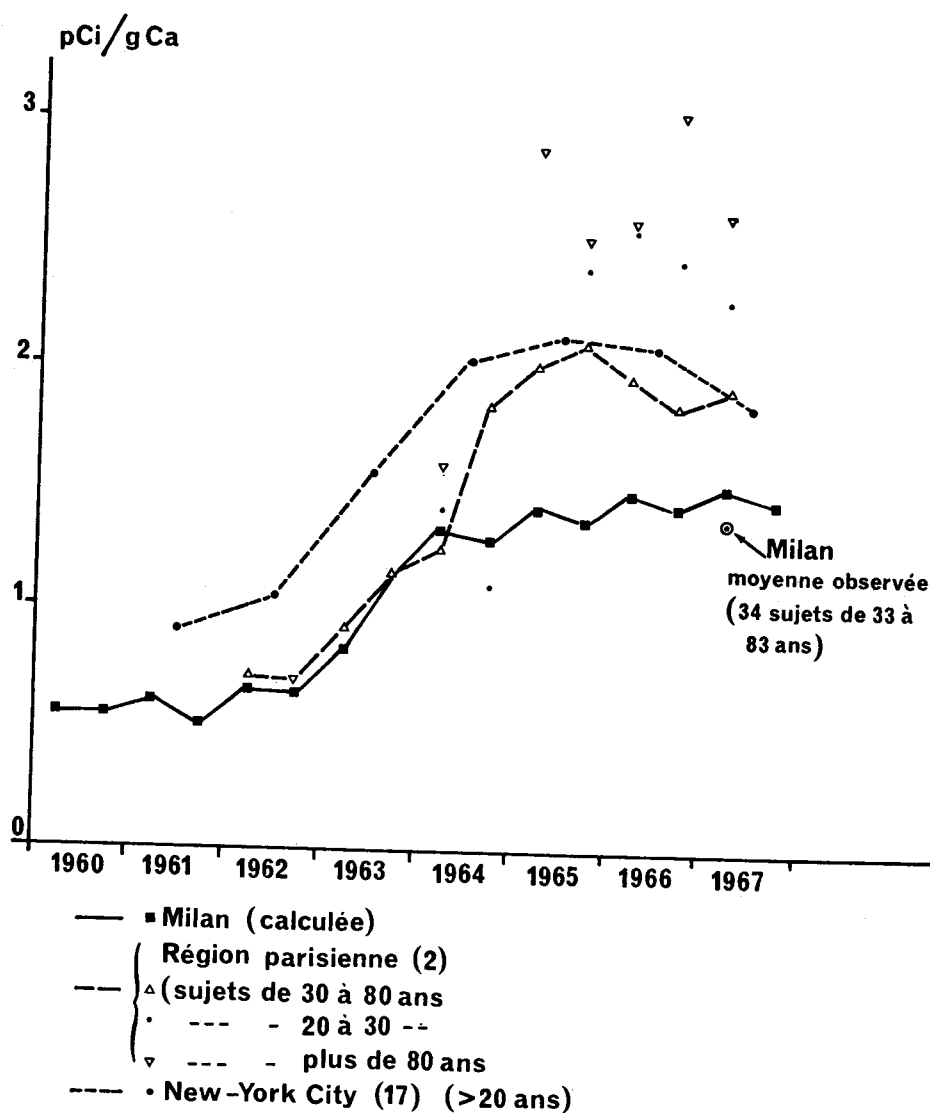


Fig. 6 Concentration du  $^{90}\text{Sr}$  dans les vertèbres pCi/g Ca

de comparaison pour les années suivantes.

L'application du modèle permet en outre l'évaluation de facteur de rétention

$$f_w(\text{os}) = \frac{{}^{90}\text{Sr fixé dans l'os}}{{}^{90}\text{Sr ingéré}}$$

à partir de l'expression suivante :

$$f_w = \frac{R \cdot f \cdot \text{Ca}}{365 \cdot I}$$

où : R : est le facteur de discrimination du strontium par rapport au calcium au niveau de la barrière intestinale

f : est la fraction du calcium stabilisé renouvelé annuellement

Ca: est la quantité de calcium présente dans la partie du squelette considéré<sup>e</sup>

I : est la quantité de calcium ingérée quotidiennement.

Cette expression du facteur de rétention du <sup>90</sup>Sr dans l'os présente l'avantage de tenir compte de la quantité de calcium ingérée dans le régime alimentaire.

En pondérant le facteur  $f_w$  pour les différentes parties du squelette, il serait possible d'estimer le facteur global pour l'ensemble du squelette.

Le traitement de l'ensemble des données résultant de ce programme est à poursuivre suivant le plan suivant :

1. Etude du rapport entre la charge osseuse du nouveau-né et l'ingestion de <sup>90</sup>Sr par la mère.

2. Etude du modèle mathématique du métabolisme du strontium applicable à différents âges.

1.3. Etude du métabolisme de l'iode ( collaboration de l'Université Libre de Bruxelles, Professeur ERMANS ) -

Des contacts ont été pris avec divers centres hospitaliers européens pour obtenir les valeurs " normales " des paramètres fonctionnels de la thyroïde chez l'adulte.

Cette étude prépare la seconde qui consistera à mesurer les captations et les éliminations urinaires chez des sujets adultes, en divers points des six pays et à l'aide de méthodes standardisées. Enfin, l'étude de l'hétérogénéité fonctionnelle de la thyroïde est entamée.

1.4. Enquêtes alimentaires -

a/ Nourrissons -

Le dépouillement de l'enquête est en cours.

b/ Adultes -

Cette étude comprend deux parties :

D'une part, la vérification de la méthode de calcul utilisée dans les enquêtes européennes. Ce travail est terminé sur la moitié des familles enquêtées.

D'autre part, l'étude des consommations familiales et individuelles sera entreprise avec la collaboration de la F.A.O. Cette enquête nous fournira des données sur les consommations des adultes dans l'un des centres citadins où portent nos prélèvements osseux, données qui seront utilisées pour l'exploitation des résultats du programme 1.2.

1.5. Dosimétrie du TGI chez l'enfant -

Un programme est amorcé au département de Pédiatrie de l'Université Libre de Bruxelles qui nous permettra d'appliquer le modèle mathématique antérieurement mis au point.

DEUXIEME PARTIE

LES FACTEURS DE TRANSFERT DE LA CONTAMINATION RADIOACTIVE

DES SOURCES DE POLLUTION A L'HOMME

L'établissement des relations entre le niveau de pollution du milieu récepteur et le niveau de contamination des différents produits alimentaires consommés par l'homme implique la connaissance de ce que l'on appelle les facteurs de transfert de la contamination.

Les études actuellement poursuivies dans ce domaine se répartissent entre trois grands groupes :

- 1/ Les transferts de la contamination à partir de l'atmosphère.
- 2/ Les transferts de la contamination à partir de l'eau.
- 3/ Les transferts de la contamination à partir du sol.

#### 2.1. Les transferts de la contamination à partir de l'atmosphère -

Les études antérieures ont conduit à distinguer une contamination par voie sèche et une contamination par voie humide.

##### 2.1.1. La contamination atmosphérique par voie sèche -

L'étude expérimentale des facteurs de transfert de la contamination atmosphérique par voie sèche a été amorcée en septembre en collaboration avec le Centre d'Etudes Nucléaires de Jülich ( Dr VOGT et Dr POLSTER ). On a procédé à quelques essais préliminaires de diffusion et de dépôt sur des surfaces de référence avec un aérosol marqué au  $^{64}\text{Cu}$ . Il reste à mettre au point les méthodes expérimentales adaptées à l'étude de la diffusion et du dépôt de l'iode sur le sol et les plantes pour différents états physico-chimiques d'une part, et différentes conditions météorologiques d'autre part.

##### 2.1.2. La contamination atmosphérique par voie humide - ( collaboration de MYTTENAEERE, Division de Biologie Euratom, Ispra ) -

Le modèle antérieurement mis au point pour l'évaluation des transferts de la contamination atmosphérique aux végétaux par voie humide fait intervenir deux modes de rétention :

- une rétention par interception de l'eau contaminée, dont l'activité persiste sur la plante après évaporation,
- une rétention par absorption des ions radioactifs au cours du ruissellement de l'eau contaminée sur les parties exposées de la plante.

Les paramètres de transfert ainsi définis présentent de ce fait une certaine variabilité en fonction des facteurs climatiques.

L'application du modèle fait appel à différentes sources d'informations en particulier :

- les résultats expérimentaux obtenus à partir d'une contamination par aspersion, les variables étant la quantité d'eau apportée, la durée de l'aspersion et la composition minérale de l'eau,
- le régime local des pluies pendant la période de croissance, régime caractérisé par le nombre de jours de pluie de différentes intensités,
- l'activité spécifique relative de l'eau de pluie, en fonction de

de la hauteur des chutes de pluie .

- la température moyenne pendant la période estivale
- la courbe de croissance du végétal

A partir de ces informations , deux méthodes d'approche peuvent être envisagées pour évaluer les taux de transfert.

1er modèle . la première consiste à estimer pour chaque classe d'intensité de pluie, l'activité apportée par unité de surface et l'activité transférée à la plante par chacun des deux modes de rétention décrits plus haut. Le transfert global est ensuite obtenu par intégration des transferts partiels .

On suppose que l'on a classé les différentes pluies de la région considérée en  $p$  classes d'intensité  $j$ . Soit  $r_{ij}$  le coefficient d'interception exprimé par le rapport :

$$r_{ij} = \frac{\text{kg d'eau retenu par interception}}{\text{kg de poids frais .}}$$

pour une pluie d'intensité  $j$ .

soit  $r_{pj}$  le coefficient de prélèvement exprimé par le rapport :

$$r_{pj} = \frac{\text{kg d'eau en contact avec la plante par le ruissellement}}{\text{kg de poids frais .}}$$

pour une pluie d'intensité  $j$

soit  $n_j$  le nombre de jours de pluie d'intensité  $j$ , soit  $F$  l'activité déposée par la pluie d'intensité  $j$ , l'unité étant l'activité déposée par une pluie de 1mm.

La contamination de la plante exprimée en activité par kg de poids frais est alors :

$$C = \sum_{j=1}^p n_j (r_{ij} + r_{pj}) F_j$$

2ème modèle . La seconde méthode consiste à définir pour la situation considérée, la pluviosité moyenne par jour de pluie . La contamination transférée par jour de pluie est alors obtenue par application du taux de transfert déterminé expérimentalement dans les conditions du jour de pluie moyen.

La contamination globale est ensuite obtenue en multipliant les résultats par le nombre de jours de pluie :

Soit ;  $r_{im}$  le facteur moyen de transfert par interception pour

la moyenne des chutes de pluie journalières . Soit  $r_{pm}$  le facteur moyen de transfert par prélèvement pour la même pluie moyenne m.

Soit ; N le nombre de jours de pluie pour la période considérée et

$F_m$  l'activité moyenne déposée par le jour de pluie moyenne . La contamination de la plante exprimée en activité par kg de poids frais est alors :

$$C = N(r_{im} + r_{pm}) F_m.$$

Les figures 7 et 8 montrent les étapes successives conduisant à l'évaluation de la contamination atmosphérique par voie humide .

Un exemple d'évaluation des données nécessaires à l'estimation de la contamination par le  $^{90}\text{Sr}$  d'une culture d'herbe à l'état jeune est donnée par la figure 9.

L'activité de l'herbe a été mesurée expérimentalement pour trois intensités de pluie simulée ( 1,5 et 10 m/m ), l'apport de contamination étant constant ( courbe 1b ).

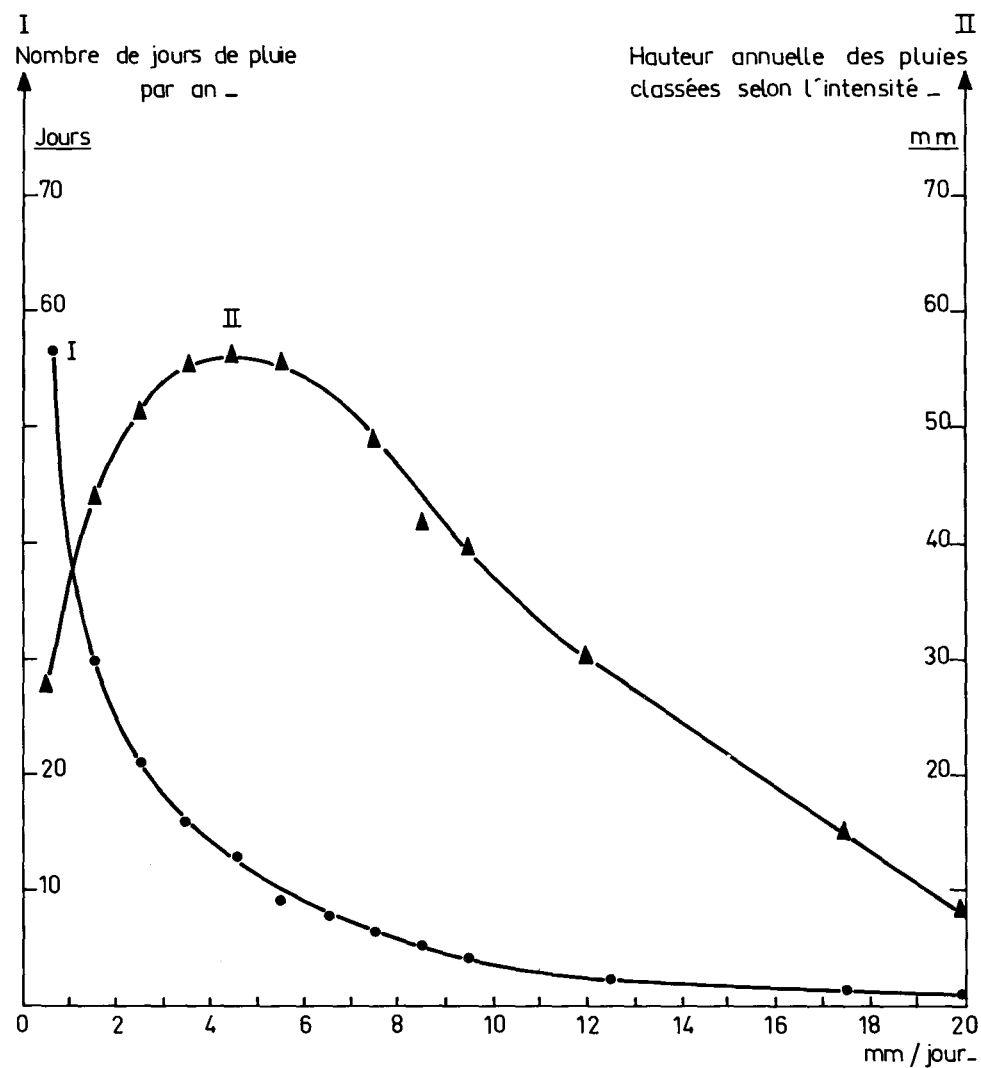
La contamination par interception ( courbe 1a ) a été estimée à partir de la capacité d'interception de l'eau évaluée d'après l'activité spécifique de l'eau. La contamination par prélèvement est alors représentée par la différence entre l'activité mesurée et la valeur estimée de la contamination par interception.

Les résultats obtenus expérimentalement à partir de ces essais modèles peuvent être adaptés à la contamination par la pluie suivant le processus suivant. On a établi à partir des données de la littérature un graphique ( figure 8 ) montrant l'évolution de l'activité spécifique de la pluie en fonction de son intensité. On peut en déduire l'activité apportée par chaque classe d'intensité de pluie, en supposant qu'une pluie de 1m/m a une activité égale à l'unité.

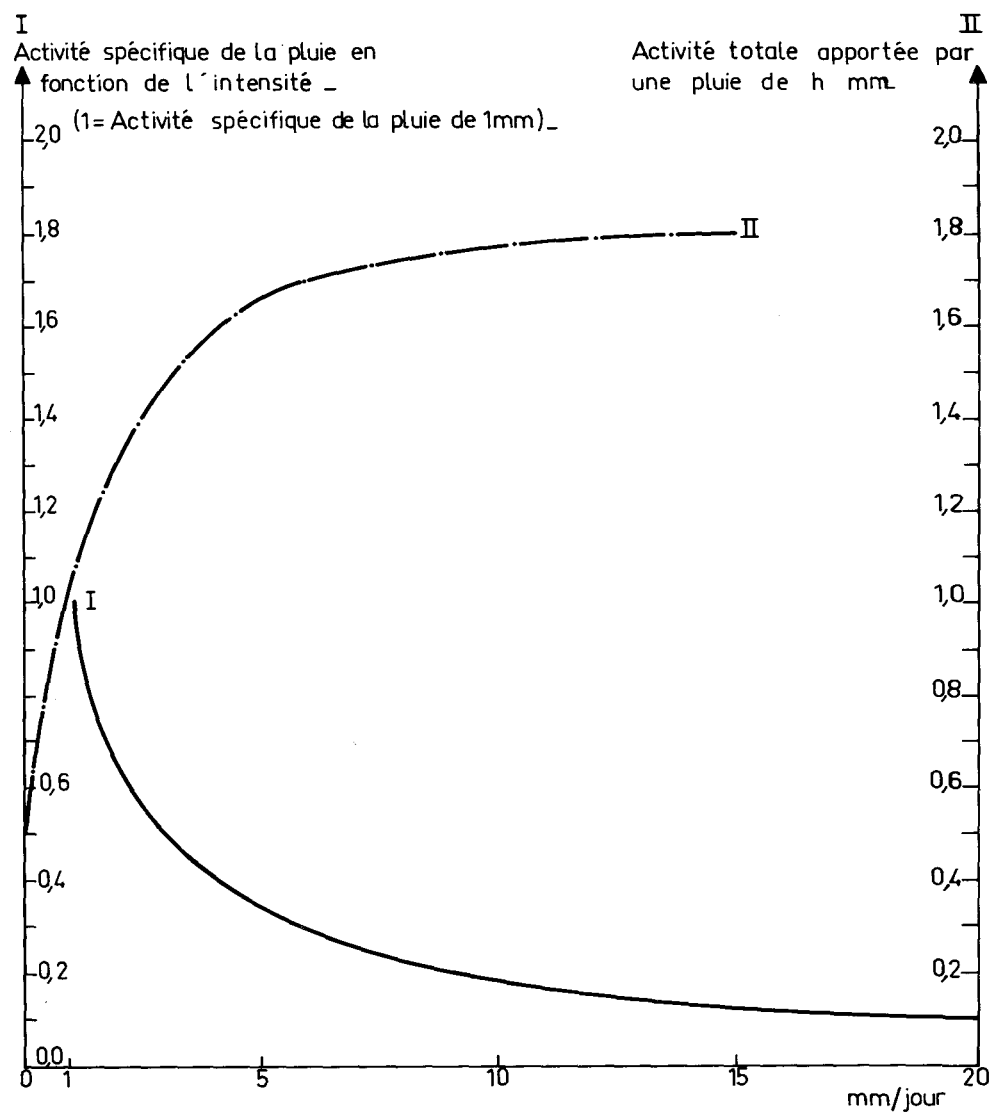
A partir des données de la figure 9, la variabilité de l'activité de la pluie en fonction de son intensité, et tenant compte des facteurs de transfert obtenus à partir des essais expérimentaux, on peut déterminer l'activité de l'herbe résultant des trois intensités de pluie considérées ( courbe 11b ). On peut également définir la part de la contamination attribuée à l'interception ( courbe 11a ) et au prélèvement ( différence entre les points de la courbe 11b et 11a ).

On peut observer enfin que pour l'herbe à l'état jeune, la contamination par prélèvement est peu importante par rapport à la contamination par interception. Pour une herbe plus âgée, la rétention par prélèvement prend une importance croissante au fur et à mesure que l'on approche de la maturité.

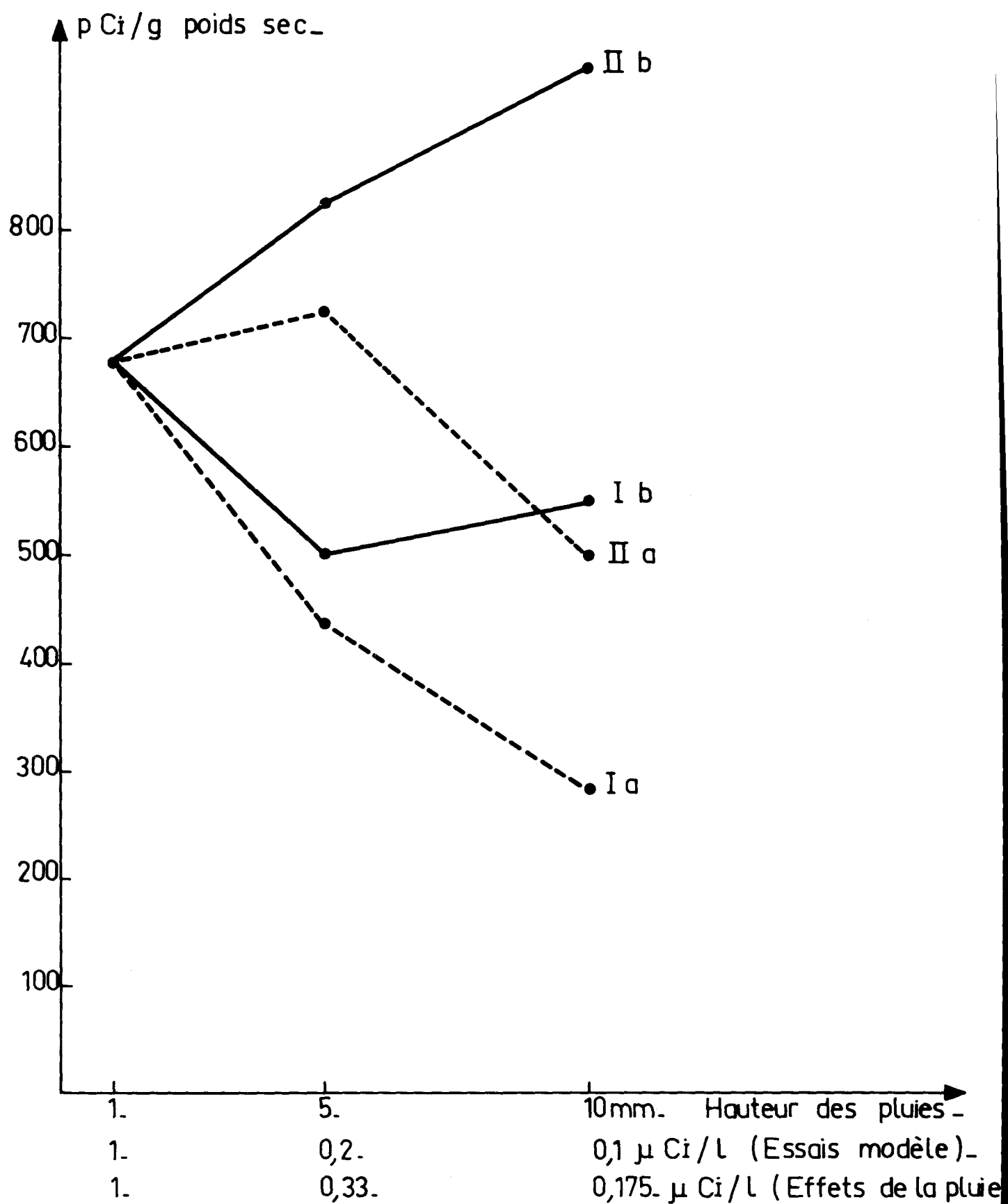




**FIGURE 7.** Type d'étude du régime des pluies.  
 I = Fréquence des jours de pluie en fonction de l'intensité.  
 II = Répartition de la précipitation annuelle entre les différentes classes d'intensité.



**FIGURE 8.** Activités spécifiques et activités totales apportées par une pluie de h mm de pluie.



**FIGURE . 9 .** Essai d'application du modèle à la contamination de l'herbe (Stade jeune) par la pluie (90.Sr) .

## 2.2. Les transferts de la contamination résultant de la pollution des eaux -

En 1970, l'activité dans ce domaine s'est surtout développée sur le plan expérimental. Cependant, dans le cadre des études de synthèse, le modèle mathématique relatif aux transferts à l'homme de la pollution des eaux, par la chaîne alimentaire, a été précisé. Cet aspect de la question est traité dans la troisième partie.

### 2.2.1. Contamination en strontium et en césium des végétaux irrigués par aspersion ( collaboration avec MYTTENAERE, Division de la Biologie d'Euratom à Ispra ) -

Cette expérimentation avait surtout pour objet d'obtenir des valeurs des facteurs de transfert eau --- végétaux irrigués dans le cas de cultures intensivement irriguées. On a expérimenté sur des salades ( Romana bionda degli ortolani ), sur des betteraves rouges ( paonazza d'Egitto ) et sur le ray-grass ( Lolium italicum ). Les plantes ont été cultivées en bacs bien drainés de 1m<sup>2</sup> de surface ( profondeur du sol : 20 cm ). Les contaminations ont été réalisées en caisson, les plantes restant en serre en dehors des périodes de contamination. Toute l'eau apportée l'a été lors des aspersions contaminantes. Cependant, dans le cas du ray-grass, on a effectué trois coupes successives : la première coupe n'a reçu que de l'eau contaminée, les seconde et troisième ont été arrosées lors des repousses avec de l'eau non contaminée. Le tableau I résume le protocole expérimental. Le tableau II donne les valeurs des facteurs de transfert pour la matière sèche des végétaux irrigués.

Si on exprime les facteurs de transfert pour les poids frais des végétaux, on obtient des valeurs de l'ordre de 8 pour le ray-grass ( parties aériennes ), de 3 pour les salades ( feuilles ), de 8 pour les betteraves ( racines ), en ce qui concerne le strontium, - de l'ordre de 6 pour le ray-grass ( parties aériennes ), de 2 pour les salades ( feuilles ), de 2 pour les betteraves ( racines ), en ce qui concerne le césium.

On a constaté enfin que le ray-grass des deuxième et troisième coupes était presque aussi contaminé que celui de la première coupe, ce qui tendrait à indiquer l'importance des processus de contamination par les racines. Bien que les quantités d'eau apportées soient du même ordre que celles utilisées dans la pratique de l'irrigation par aspersion sous climat méditerranéen sec, le sol, dans les expériences décrites, est resté presque constamment saturé d'eau, car le maintien en serre a réduit l'évapotranspiration. Les résultats précédents doivent donc être considérés comme valables seulement dans des conditions de culture forcée en serres, qui peuvent être d'ailleurs considérées comme critiques en ce qui concerne les risques de pollution par l'eau.

### 2.2.2. Etudes expérimentales relatives au ruthénium -

#### 2.2.2.1. Radioécologie physico-chimique du ruthénium ( collaboration de l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Lille et la Société Ugine-Kuhlmann ) -

L'étude du comportement des radioruthéniums en vue d'une évaluation satisfaisante des risques encourus par les divers utilisateurs des milieux aquatiques utilisés comme milieux récepteurs pour des effluents radioactifs liquides implique l'analyse approfondie de divers aspects physico-chimiques et analytiques. La tendance à former des complexes minéraux et organiques avec les composés normalement ou accidentellement

TABLEAU I - CONTAMINATION EN STRONTIUM ET CESIUM LORS D'IRRIGATION PAR ASPERSION - PROTOCOLE EXPERIMENTAL -

	Ray grass	Salades	Betteraves rouges
Semis	4/8/1970	5/8/1970	5/8/1970
Repiquage	-	19/8/1970	19/8/1970
Eau d'irrigation	eau du Lac Majeur	eau du Lac Majeur	eau du Lac Mejeur
Quantité par aspersion	50 mm	25 mm	25 mm
Nombre et rythme des aspersions	6-1 par semaine	8-2 par semaine	13-2 par semaine
Récolte	1ère coupe : 1/10/1970 2ème coupe : 6/11/1970 3ème coupe : 11/1/1971	7/10/1970	9/11/1970

Les facteurs de transfert moyens exprimés pour la matière sèche des végétaux sont portés dans le tableau II.

TABLEAU II - FACTEURS DE TRANSFERT EAU D'IRRIGATION → VEGETAUX

rapport :  $\frac{\text{activité par g matière sèche}}{\text{activité par g d'eau}}$

Espèces	$^{85}\text{SR}$ $^{134}\text{Cs}$			
	Parties aériennes	Racines	Parties aér.	Racines
Ray-grass	85	-	60	-
Salades	55	110	40	60
Betteraves rouges	80 (vieilles feuilles)	80	65 (vieilles feuilles)	
	35 (jeunes feuilles)		25 (jeunes feuilles)	20

présents dans les eaux semble être un facteur particulièrement important du devenir des rutheriums des effluents. Cet aspect a fait l'objet d'études en collaboration avec l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Lille. Une telle étude impliquait la mise au point de méthodes de référence permettant le diagnostic des formes physico-chimiques présentes dans les milieux de dispersion ainsi que la synthèse de formes physico-chimiques aussi bien définies que possible. Ce fut l'objet d'une recherche en collaboration avec la Laboratoire Central de la Société Ugine-Kuhlmann. Actuellement, ces deux études peuvent être considérées comme terminées et les résultats observés sont brièvement énumérés ci-dessous.

#### 2.2.2.1.1. Etudes des complexes

Les recherches antérieures poursuivies à l'Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Lille ont permis de préparer des solutions de ruthénium sans excès d'acides et ne contenant que des ions ruthéniums simples  $Ru^{4+}$  et  $Ru^{3+}$ . Ces solutions se sont révélées suffisamment stables pour servir de solutions de référence pour des expérimentations ultérieures relatives au ruthénium non nitrosé. La difficulté essentielle rencontrée, au départ, dans l'étude de la complexation du nitrosyl-ruthénium a été la préparation de produits de départ aussi purs et bien définis que possible, suffisamment stables en solution aqueuse pour ne pas évoluer rapidement aux températures des essais et dont les ligands ne sont pas trop fortement liés au nitrosylruthénium pour permettre des remplacements pour divers groupes complexants. Le choix s'est porté sur un chlorure de nitrosylruthénium synthétisé en laboratoire.

Les méthodes d'études utilisées sont très classiques, elles relèvent de la spectrophotométrie, de la pH-métrie, de la conductimétrie et de la potentiométrie. Dans le cas de certains complexes peu stables, on a dû recourir à une méthode indirecte, c'est-à-dire évaluer la stabilité du complexe étudié grâce à une réaction de remplacement du ligand étudié par un ligand plus fort fournissant un complexe de stabilité déjà connue. Enfin, dans le cas des études sur la complexation du nitrosylruthénium, on a eu recours systématiquement au déplacement de ligands chlorures par les ligands étudiés.

En ce qui concerne les complexes du ruthénium non nitrosé, on a déterminé les constantes de stabilité  $K_n$  ou leur cologarithmes

$$K_n = \frac{[Ru][X]^n}{[Ru X_n]} \quad \text{pour un complexe du type } Ru X_n$$

$$pK_n = - \lg K_n$$

Dans le cas des complexes du nitrosylruthénium, on a évalué la constante

$$K = \frac{[RuNOCl_3][K_n]^n}{[RuNOX_n]} \quad \text{pour un complexe du type } Ru NO X_n.$$

On a étudié les complexes du ruthénium et du nitrosylruthénium avec des composés dont l'action complexante "in situ" est vraisemblable :

- un acide dicarboxylique simple : l'acide oxalique,
- des acides hydroxycarboxyliques : acides malique, citrique, glycuronique, galacturonique,
- des acides aminés : le glycocolle, l'acide aspartique, la cystéine,
- des acides possédant la fonction thiol ( thio-alcool ) : la cystème, déjà citée, les acides thioglycolique, thiolactique, thiomalique,
- un composé à fonction di-énol : l'acide ascorbique.

Les résultats obtenus sont portés dans les tableaux III et IV.

Ces recherches, purement chimiques, ne permettent pas de tirer des conclusions précises quant à l'importance " in situ " des phénomènes de complexation des radionucléides du ruthénium et du nitrosylruthénium. Cependant, les indications qu'elles ont fournies sont susceptibles d'aider l'interprétation des résultats obtenus soit dans le cadre de l'expérimentation radioécologique, soit dans celui du contrôle du milieu : les résultats précédents indiquent que le ruthénium non nitrosé, dont la présence, à l'état de  $^{106}\text{Ru}$ , est assez probable, est fortement complexé par les acides polycarboxyliques, tel l'acide citrique, assez fréquent au voisinage de certains organismes marins ( présence dans l'eau intervalvaire des bivalves ) et par les acides thiocarboxyliques qu'on rencontre surtout dans les eaux réductrices et au voisinage des algues littorales en décomposition. On constate que ces mêmes acides thiocarboxyliques complexent intensément le nitrosylruthénium, de même que certains acides uroniques simples qui sont les produits d'hydrolyse des constituants des algues.

#### 2.2.2.1.2. Etude du comportement en milieu très dilué du ruthénium de combinaisons synthétiques

A la base de cette étude, se situe la préparation de combinaisons synthétiques du nitrosylruthénium. Les composés préparés sont :

- le tétranitrosylruthénium,  $\text{Ru}(\text{NO}(\text{NO}_2)_4\text{OH}, 2\text{H}_2\text{O})$  obtenu cristallisé
- le chlorure de nitrosylruthénium dont la composition correspond à la formule  $\text{RuNOCl}_3$ ,
- l'hydroxyde de nitrosylruthénium  $\text{RuNO}(\text{OH})_3$ , chacun de ces produits pouvant être obtenu marqué soit par  $^{103}\text{Ru}$ , soit par  $^{106}\text{Ru}$  ( forte activité spécifique ).

Les essais réalisés en 1970 concernent l'électrophorèse sous haute tension et l'échange d'ions.

##### a/ Electrophorèse sous haute tension -

Les expérimentations ont porté sur des solutions aqueuses des produits synthétiques et sur un effluent réel provenant de la station de dégainage de la Hague

- ~~Tétranitrosylruthénium~~ : essai avec l'acide lactique comme électrolyte support - 5000 volts pendant cinquante minutes : le ruthénium migre en totalité vers l'anode - 2 pics bien nets, donc au moins deux formes anioniques.

- Chlorure de nitrosylruthénium : essai avec du nitrate de sodium 0,05 M

TABLEAU III - COMPLEXES DU RUTHENIUM III -

<div>Chaînes carbonées</div> <div>Fonctions</div>	2 carbones C - C	3 carbones C - C - C	4 carbones C - C - C - C	6 carbones $\begin{array}{c} \text{C}-\text{C}-\text{C}-\text{C}-\text{C}- \\   \\ \text{C} \end{array}$
2 fonctions acides	acide oxallique $\text{pK}_1 \simeq 5$ $\text{pK}_3 \simeq 12,3$			
2 fonctions acides + 1 fonction alcool			acide malique $\text{pK}_1 \simeq 0$	
1 fonction acide + 1 fonction aminé	glycocolle $\text{pK}_1 \simeq 3,8$			
2 fonctions acides + 1 fonction aminé			acide aspartique $\text{pK}_1 \simeq 1,9$	
1 fonction acide + 1 fonction thiol	acide thloglycolique $\text{pK}_2 \simeq 6,7$ $\text{pK}_3 \simeq 9,2$	acide thiolactique $\text{pK}_2 \simeq 5,8$ $\text{pK}_3 \simeq 7,7$		
2 fonctions acides + 1 fonction thiol			acide thiomalique $\text{pK}_3 \simeq 6,2$	
3 fonctions acides + 1 fonction alcool tertiaire				acide citrique $\text{pK}_3 \simeq 8,4$

.../...

TABLEAU IV - COMPLEXES DU NITROSYLRUTHENIUM - CONSTANTES (pK) DE LA  
REACTION  $\text{RuNOCl}_3 + n\text{X} \rightleftharpoons \text{Ru NO X}_n$

Composés complexants	Nature du complexe	$\text{pK}_{\text{Cl/X}}$
Acide thloglycolique (TG)	$[\text{Ru NO (TG)}_2]$	7,2
Acide thiolactique (TL)	$[\text{Ru NO (TL)}]$	4,5
Acide thiomallique (TM)	$[\text{Ru NO (TM)}]$	4,2
Acide galacturonique (GAL)	$[\text{Ru NO (GAL)}_2]$	5
Acide glycuronique (GLY)	$[\text{Ru NO (GLY)}_2]$	3,8
Acide ascorbique (ASC)	$[\text{Ru NO (ASC)}]$	$\approx -2$

.../...



TABLEAU V - ESSAIS D'ECHANGE D'IONS SUR DIVERS DERIVES DU RUTHENIUM :  
Ru fixé en % du Ru total -

Solutions	Résine anionique forte (Dowex 1x10-Cl <sup>-</sup> )	Résine cationique forte (CG-120-Na <sup>+</sup> )	Résine anionique faible CG 4B-OH <sup>-</sup>	Résine cationique faible (CG 50 H <sup>+</sup> )
Tétranitronitrosyl-ruthénium - solution dans l'eau déminéralisée	100	93	100	9
Tétranitronitrosyl-ruthénium - solution en milieu ClNa: 35g/l échange après 48 heures	94	57	94	8
Tétranitronitrosyl-ruthénium - solution en milieu NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> à 2g/l	87	94	35	29
Chlorure de nitrosyl-ruthénium - solution dans l'eau (pH=3,5)	99	25	23	7
Chlorure de ruthénium - solution diluée 20 fois	70	98	98	9
Chlorure de ruthénium - solution aqueuse amenée à pH=10 par l'ammoniaque	48	94	53	97

comme électrolyte support - 3000 volts pendant 75 minutes : une fraction importante de ruthénium ne migre pas ; on observe un pic côté cathode et un pic côté anode.

- Hydroxyde de nitrosylruthénium: essai avec du nitrate de sodium 0,05 M comme électrolyte support - 4500 volts pendant 60 minutes : on observe une forme anionique qui migre intensément et deux formes cationiques. En milieu lactique, on observe seulement 2 pics cationiques.

- Effluent de dégainage ( La Hague ). Cet effluent exempt de tributylphosphate ( TBP ) et de ses produits de décomposition est 0,7 M en acide nitrique et contient 27 grammes par litre de magnésium ( Mg ). Son activité en ruthénium est de l'ordre de 0,2 Ci/m<sup>3</sup>. L'électrophorèse sous haute tension montre plusieurs pics anioniques.

#### b/ Echange d'ions -

Le comportement très divers et complexe du ruthénium en présence d'échangeurs d'ions a déjà été signalé. Les résultats obtenus sur le tétranitronitrosylruthénium et le chlorure de nitrosylruthénium préparés par Ugué-Kuhlmann, un nitratonitrosylruthénium synthétisé à Mol par les soins du Département de Radiobiologie et un chlorure de ruthénium fourni par Saclay confirment ces résultats ( tableau V ).

Ces résultats dont l'interprétation est difficile devront être discutés en fonction des données obtenues par ailleurs, notamment sur des effluents réels et sur des concentrés de ruthénium de fission. Le travail expérimental dans ce domaine doit maintenant faire place à un travail de synthèse qui fera ultérieurement l'objet d'un rapport détaillé.

#### 2.2.2.2. Etudes de radioécologie appliquée -

Ces études ont été poursuivies dans le but de situer l'importance pratique des problèmes de protection posés par le rejet de radioruthéniums dans les eaux continentales.

##### 2.2.2.2.1. Etude de la disponibilité biologique du nitrosylruthénium ( en collaboration avec VAN DER BORCHT et BEQUE, Département de Radiobiologie, CEN-MOL, Belgique ) -

L'expérimentation a porté sur la contamination, par diverses formes physico-chimiques du ruthénium, de deux organismes dulcicoles : lymnaea stagnalis, le limnée, mollusque gastéropode, et Alburnus lucidus, l'ablette, provenant de pisciculture et adaptée aux conditions de laboratoire.

L'eau utilisée est l'eau du circuit de distribution du Centre de Mol, préalablement filtrée sur Millipore 5  $\mu$ . Les expérimentations ont été réalisées en béchers ; leur durée a été de 121 heures, l'eau étant maintenue à 15°C environ. Les composés du ruthénium utilisés ont été :

- un nitratonitrosylruthénium en provenance du Centre d'Amersham ( code RKS 1 - 106Ru " sans entraîneur " - solution 8 à 10 M nitrique ; il semble qu'il s'agisse d'un mélange de complexes nitrato ),

- un chlorure de ruthénium fourni par Saclay ( code S - solution M en acide chlorhydrique ; il semble qu'il s'agisse d'un mélange de complexes chlorhydriques, de  $\text{RuCl}_4$  et de  $\text{RuCl}_3$ ,
- l'hydroxyde de nitrosylruthénium synthétisé par Ugine-Kuhlmann,
- le chlorure de nitrosylruthénium synthétisé par Ugine-Kuhlmann,
- le tétranitronitrosylruthénium synthétisé par Ugine-Kuhlmann.

Les facteurs de transfert F eau  $\rightarrow$  organismes entiers ont été évalués ( tableau VI ).

TABLEAU VI - FACTEUR DE TRANSFERT EAU --- ORGANISMES DULCICOLES ( organismes entiers ) ( 15°C, intervalle de confiance pour P = 0,95 ) -		
	Ablette	Lymnée
Chlorure de ruthénium	0,25 $\pm$ 0,09	40,0 $\pm$ 35,6
Nitratonitrosylruthénium	0,31 $\pm$ 0,37	27,4 $\pm$ 3,9
Tétranitronitrosylruthénium	0,17 $\pm$ 0,07	2,84 $\pm$ 1,18
Chlorure de nitrosylruthénium	1,88 $\pm$ 2,78	8,84 $\pm$ 2,51
Hydroxyde de nitrosylruthénium	0,81 $\pm$ 1,10	14,7 $\pm$ 3,5

Ces résultats montrent :

- qu'il existe des variations entre les prélèvements par un même organisme du ruthénium de formes physico-chimiques différentes, cette variabilité étant, pour l'instant, difficile à interpréter,
- que les limnées prélèvent assez intensément le ruthénium, à l'exception, semble-t-il, de la forme la plus soluble et la plus stable, le tétranitronitrosylruthénium,
- que le poisson prélève peu le ruthénium, notamment le ruthénium soluble.

Ces résultats demandent encore à être précisés avant de les utiliser pour une prévision des risques de contamination des chaînes alimentaires aquatiques dulcicoles de l'homme ou de proposer des indicateurs fidèles du ruthénium " in situ ", utilisables pour le contrôle des eaux.

#### 2.2.2.2.2. Etude de la contamination des végétaux irrigués ( en collaboration avec MYTTENAERE, Division de la Biologie d'Euratom, à Ispra ) -

Les études entreprises en 1969 sur le comportement du ruthénium en rizières irriguées par submersion ont été suivies en 1970 par des expérimentations sur des végétaux irrigués par aspersion. Les contaminations ont été réalisées en caisson par de l'eau du Lac Majeur contaminée volontairement par du ruthénium de formes physico-chimiques variées.

a/ Expérimentation sur tomate -

Les plantes ont été contaminées plusieurs fois avant la floraison. En fin de période végétative, on a analysé les feuilles, les tiges, les racines, les fruits. Dans le tableau VII, on a exprimé les résultats en termes de facteurs de transfert eau → organes des végétaux contaminés.

TABLEAU VII - CONTAMINATION EN RUTHENIUM DE TOMATES IRRIGUEES PAR ASPERSION - FACTEURS DE TRANSFERT ( ordre de grandeur )							
	Plantes à la floraison			Plantes lors de la récolte			
	Feuilles	Tiges	Racines	Feuil.	Tiges	Racines	Fruits
Chlorure de ruthénium, Saclay	5	0,5	0,01	2	0,2	0,1	$10^{-3}$
Tétranitrosylruthénium, UGINE-Kuhlmann	3	0,2	0,01	1	0,1	0,1	$10^{-3}$
Chlorure de nitrosylruthénium, UGINE-Kuhlmann	4	0,5	0,01	1	0,2	0,05	$10^{-3}$
Chlorure de nitrosylruthénium, UGINE-Kuhlmann	4	1	0,05	1	0,2	0,05	$10^{-3}$

Ces résultats montrent

- que, seuls, les organes directement en contact avec l'eau contaminée ont prélevé du ruthénium
- que le ruthénium ainsi déposé sur les feuilles et les tiges est très peu transféré aux fruits.

b/ Expérimentation sur salade -

Les résultats précédents incitaient à étudier plus particulièrement le cas de légumes-feuilles dont l'homme consomme les organes directement contaminés par l'eau d'irrigation. A cette fin, on a contaminé par aspersion ( une aspersion unique ) des plantes de laitue. Après contamination et ressuyage, les plantes ont été récoltées, comptées, les autres ont été soumises à un arrosage avec de l'eau non contaminée, puis comptées. Les résultats obtenus figurent dans le tableau VIII.

.../..

TABLEAU VIII - CONTAMINATION DE LA LAITUE AVANT ET APRES LAVAGE A L'EAU NON CONTAMINEE - VALEUR DES FACTEURS DE TRANSFERT EAU → PLANTES ENTIERES ( ordre de grandeur ) -		
Formes physico-chimiques	Avant lavage	Après lavage
Chlorure de ruthénium, Saclay	0,5	0,2
Tétranitronitrosylruthénium Ugine Kuhlmann	0,5	0,05
Chlorure de nitrosylruthénium Ugine Kuhlmann	0,5	0,2
Hydroxyde de nitrosylruthénium Ugine Kuhlmann	1	0,5

On constate qu'après une aspersion unique et un lavage à l'eau, non contaminée, le facteur de transfert est de l'ordre de 0,5 pour le ruthénium d'espèces physico-chimiques relativement peu solubles. Contrairement à ce qui a été observé pour d'autres organismes, les risques de transfert du ruthénium ne paraissent donc pas négligeables lorsqu'il s'agit de légumes-feuilles irrigués par aspersion.

2.2.3. Etudes relatives au cobalt ( en collaboration avec Mme MERLINI, et MM MYTTENAERE et RAVERA, Division de la Biologie d'Euratom, à Ispra ) -

Les expérimentations poursuivies les années précédentes sur le comportement du cobalt dans les écosystèmes aquatiques et irrigués ont permis d'évaluer les facteurs de transfert de l'eau aux organes des organismes consommés par l'homme et l'incidence de certains de leurs paramètres ( tableau IX ). Il ressort de ces études que les radiocobalts ne semblent devoir être considérés comme des radionucléides critiques que dans quelques cas particuliers, notamment dans celui des végétaux par aspersion dont l'homme consomme les organes directement exposés à l'eau d'irrigation. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication commune [5].

.../..

TABLEAU IX - PARAMETRES DES TRANSFERTS DU RADIOCOBALT DE L'EAU AUX ORGANISMES AQUATIQUES ET IRRIGUES

ORGANISMES	PARAMETRES	FACTEURS DE TRANSFERT Radioactivité 1 g organisme Radioactivité 1 g d'eau	REMARQUES
Poisson <u>Carassius</u> <u>Auratus</u>	Etat physico chimique du cobalt et température de l'eau	Co ionique : F=1 Co EDTA : F=0,2  Co ionique: F=3 Co EDTA : F = 0,3	} aquarium- 10 jours eau à 10°C  } idem -10 jours eau à 20°C
Bivalves <u>Unio mancus</u> (tissus mous)	Etat physico-chimique du cobalt	Co ionique F ≈ 5 Co EDTA : F ≤ 0,5	écosystèmes artificiels submergés
Riz Irrigué par submersion ( endosperme du grain )	Etat physico chimique du cobalt	Co ionique : F ≈ 0,6 Co EDTA: F ≈ 0,1	écosystèmes artificiels submergés
Riz Irrigué	Système d'irrigation	La submersion favorise la contamination du riz .	expérimentation en lysimètres & mesures "in situ" en rizières naturelles .
Végétaux Irrigués par aspersion	Etat physico chimique du cobalt et nature de l'eau d'irrigation	Transfert eau → feuilles Eau déminéralisée + <sup>58</sup> Co+O-EDTA: F ≈ 5 + 10ppm EDTA F=3 à 5  Eau du Lac Majeur (20ppm Ca) + <sup>58</sup> Co+O, EDTA: F ≈ 1 + 10ppm EDTA : F=3	Aspersion: 10mm/10min eau 20° C à 25° C

D'autre part, la contamination du seston lacustre par le cobalt-58 dans des conditions de lumière, de température identiques à celles réalisées " in situ " a fait l'objet d'études récentes. Des échantillons d'eau ont été prélevés à une profondeur donnée à l'aide de filet d'éterlon ( 125  $\mu$  ) et stockés en bouteilles. On leur a ajouté 1  $\mu$ Cl de cobalt-58, puis les bouteilles ont été scellées et replacées à la profondeur des prélèvements. Après 4 heures, les bouteilles ont été de nouveau prélevées et portées au laboratoire. Le seston a été filtré sur filtre millipore de 0,45  $\mu$  et les filtres ont été comptés.

Les divers prélèvements ont été réalisés à différentes profondeurs de façon à faire varier les conditions de lumière et de température. On a constaté que l'activité au  $^{58}\text{Co}$  du seston augmente quand la profondeur augmente. Ceci semble devoir être mis en relation avec une adsorption importante du cobalt sur les déchets organiques qui sont plus abondants en profondeur qu'en surface. Les variations en fonction de la profondeur sont surtout marquées en été : en cette saison, l'activité du cobalt-58 du seston en surface est la moitié de celle du seston à - 25 cm. En hiver, les différences sont faibles ( 10% ).

2.2.4. Etudes relatives au zinc ( en collaboration avec Mme MERLINI, MM BERG et RAVERA, Division de la Biologie d'Euratom, à Ispra ) -

Le zinc, élément biologiquement très important, a un radio-isotope, le zinc-65, qui est un produit d'activation figurant dans de nombreux effluents liquides. Son comportement en milieu marin est très étudié ; par contre, ce radionucléide a fait l'objet d'assez peu de recherches en milieu aquatique continental. Les expérimentations réalisées en 1970 portent sur les deux aspects suivants :

- la contamination du seston par le zinc-65
- la contamination des poissons par le zinc-65 des eaux.

2.2.4.1. Contamination du seston -

La méthode utilisée dans cette étude est la même que celle décrite dans le cas du cobalt. On constate que :

- pour toutes les saisons, l'activité du seston en zinc-65 diminue avec la profondeur, contrairement à ce qui a été observé dans le cas du cobalt,
- que cette diminution est surtout marquée au début de l'automne, : l'activité retenue sur le seston superficiel est alors six fois plus forte toutes choses égales par ailleurs, que celle retenue par le seston à l'immersion - 25 mètres,
- que cette diminution est la plus faible en hiver,
- qu'à toutes les profondeurs, le zinc, comme d'ailleurs le cobalt, est intensément prélevé par le seston.

Il semble que le prélèvement du zinc-65 soit directement lié à l'activité métabolique du plancton, contrairement à celui du cobalt qui semble être le fait de toutes les particules en suspension, en particulier les particules non vivantes.

Les résultats de cette étude d'orientation montrent déjà que le zinc-65 de l'eau peut parvenir aux organismes aquatiques supérieurs,

non seulement par le fait d'un transfert direct à partir de l'eau, mais aussi par la voie indirecte de leur chaîne alimentaire.

#### 2.2.4.2. Contamination directe des poissons à partir de l'eau -

Parallèlement à l'étude précédente sur le sésun, des expérimentations sur le transfert direct du zinc, de l'eau aux poissons, ont été entreprises. On a étudié en aquariums la contamination de Carassius auratus (poisson rouge) et Lepomis gibbosus (perche soleil) sur lesquels on a fait les observations suivantes :

- Régulation homéostatique du zinc : le zinc semble faire l'objet d'une régulation homéostatique. La fraction de radiozinc absorbée par les branchies est plus élevée dans le cas où le poisson ne reçoit pas de zinc stable dans la nourriture. Les taux d'accumulation du zinc-65 à partir de l'eau ont été mesurés et la demi-vie biologique a été déterminée chez Lepomis gibbosus : elle est égale à 97 jours pour des poissons recevant de la nourriture avec 16 ppm de zinc et égale à 27 jours pour des poissons nourris avec un aliment, sinon exempt de zinc, du moins très pauvre en cet élément.
- Différences spécifiques dans l'accumulation du zinc : Carassius auratus accumule davantage le zinc que Lepomis gibbosus. En ce qui concerne l'excrétion du zinc, Carassius perd plus rapidement le radiozinc que Lepomis, surtout dans les premiers jours ( tableau X ).
- Influence des ions accompagnant le zinc dans l'eau : on a étudié l'influence du cadmium sur le transfert du zinc-65 de l'eau aux poissons. L'ion  $Cd^{++}$  a des concentrations relativement grandes, mais n'induisant pas de phénomènes apparents de toxicité, diminuent l'accumulation du zinc-65 ( tableau XI ). Cette étude devra se poursuivre par celle de l'influence des ions  $Ca^{++}$ ,  $Zn^{++}$  et d'anions complexants sur le prélèvement du zinc-65 à partir de l'eau.
- Influence de la nature des aliments non radioactifs ingérés par les poissons : l'intensité du prélèvement du radiozinc à partir de l'eau est fonction du type d'aliments ingérés ( tableau X ). Il s'agit d'un facteur très important et il serait intéressant de préciser les résultats obtenus en étudiant l'effet d'une ingestion d'aliments naturels.
- Répartition du zinc-65 après la phase de contamination ( tableaux XII et XIV ) : chez Carassius, après une période de contamination durant 29 jours, les organes les plus radioactifs sont les intestins et le rein, les parties les moins radioactives, le cerveau, le muscle, le sang, les gonades mâles et le squelette. Chez Lepomis, après une période de contamination de 55 jours, les parties les plus radioactives sont les gonades, le rein, les nageoires, les branchies, la rate et le sang, les parties les moins radioactives, le muscle et le cerveau. Dans les deux espèces, le muscle est donc relativement peu contaminé.
- Répartition du zinc-65 après contamination, puis décontamination partielle en eau inactive ( tableaux XIII et XV ) : pour Carassius, le tractus gastro-intestinal reste le plus contaminé après 14 jours de séjour en eau inactive, mais le squelette retient une part importante du zinc-65 résiduel ;



pour Lepomis après 42 jours de séjour en eau inactive, les organes les plus actifs sont les yeux, le rein, la peau, le squelette et les gonades femelles.

On a, en outre, réalisé une expérimentation d'orientation sur la contamination de Lepomis à la suite d'un repas radioactif unique. La perte de radioactivité pour l'organisme entier est alors assez rapide, puisqu'en moins de deux jours, l'animal a perdu plus de la moitié du zinc-65 ingéré ( tableau XVI ).

TABLEAU X - CONTAMINATION DES POISSONS PAR $^{65}\text{Zn}$ - FACTEURS DE TRANSFERT EAU $\rightarrow$ ORGANISMES ENTIERES		
Organismes	Conditions expérimentales	Facteur de transfert
<u>Carassius</u>	$^{65}\text{Zn}$ dans l'eau - poissons nourris avec un aliment synthétique préparé au laboratoire - 29 jours	22
	idem, mais poissons nourris avec un aliment commercial pour truites	300
<u>Lepomis</u>	$^{65}\text{Zn}$ dans l'eau - poissons nourris avec un aliment synthétique préparé au laboratoire, sans zinc stable ajouté - 55 jours	10
	idem, mais poissons nourris avec le même aliment synthétique additionné de 16 ppm de zinc stable	5

TABLEAU XI - INFLUENCE DES IONS  $\text{Cd}^{++}$  DANS L'EAU SUR LA CONTAMINATION DE LEPOMIS PAR  $^{65}\text{Zn}$  - ANIMAUX NOURRIS AVEC UN ALIMENT SYNTHETIQUE AVEC OU SANS ZINC AJOUTE ( activités en  $^{65}\text{Zn}$  exprimées en coups par g et par minute )

	pas de $\text{Cd}^{++}$ ajouté eau à 0,02 ppm $\text{Cd}^{++}$	+ 0,25 ppm $\text{Cd}^{++}$	+ 0,5 ppm $\text{Cd}^{++}$
Après 4 jours, aliment-Zn	15	6	7
aliment+Zn	23	16	7
Après 12 jours, aliment-Zn	46	16	16
aliment+Zn	56	16	17
Après 28 jours, aliment-Zn	122	29	32
aliment+Zn	113	40	32

TABLEAU XII - REPARTITION DU ZINC DANS CARASSIUS APRES 29 JOURS DE CONTAMINATION - ou : Résultats exprimés en calculant le rapport

$$R = \frac{{}^{65}\text{Zn dans un lg d'un organe}}{{}^{65}\text{Zn dans lg de l'organisme pris dans sa totalité}}$$

Organes	Valeurs de R
Oesophage + estomac	5,2
Intestin antérieur	6,2
Intestin postérieur	8,4
Rein	1,3
Rate	0,80
Foie	0,80
Coeur	0,3
Gonades mâles	0,2
Gonades femelles	0,6
Sang	0,2
Peau et écailles	0,3
Nageoires	0,4
Ouies	0,9
Cerveau	0,1
Muscles	0,1 - 0,2
Squelette	0,2 - 0,3
Reste du corps	0,3

TABLEAU XIII - REPARTITION DU ZINC DANS CARASSIUS APRES 29 JOURS DE CONTAMINATION ET 14 JOURS DE SEJOUR EN EAU INACTIVE -

Organes	Valeurs de R
Intestin antérieur	11
Intestin postérieur	4
Rein	1,5
Gonades mâles	2,2
Gonades femelles	1,1
Peau et écailles	0,4 - 0,5
Nageoires	2
Muscles	0,3
Squelette	2,2

TABLEAU XIV - REPARTITION DU ZINC DANS LEPOMIS APRES 55 JOURS DE CONTAMINATION

Organes	Valeurs de R
Oesophages + estomac	2
Intestins	1,6
Coeur	1,1
Foie	1,4
Rein	2,8
Gonades femelles	3,2
Gonades mâles	2,6
Sang	1,6
Rate	1,7
Peau	1,4
Ecaillés	1,2
Nageoires	2,5
Ouies	1,8
Cerveau	0,6
Muscles	0,3
Os	1,1
Reste du corps	0,7

TABLEAU XV - REPARTITION DU ZINC DANS LEPOMIS APRES CONTAMINATION ET SEJOUR DE 42 JOURS EN EAU INACTIVE -

Organes	Valeurs de R
Oesophage + estomac	1,3
Intestin	1,1
Coeur	1,3
Foie	1,3
Rate	0,7
Rein	3,2
Sang	0,2
Peau	2
Ecaillés	1,3
Nageoires	2,6
Yeux	4,8
Cerveau	0,5
Gonades femelles	2,7
Squelette	1,8
Reste du corps	0,6

TABLEAU XVI - CINETIQUE DE LA PERTE EN $^{65}\text{Zn}$ CHEZ LEPOMIS APRES INGESTION UNIQUE D'UN ALIMENT CONTAMINE -	
Temps après ingestion	% du $^{65}\text{Zn}$ restant dans l'organisme
6 heures	100
1 Jour	80
2 Jours	41
3 Jours	26
9 Jours	16
25 Jours	11

Il est actuellement très difficile de tirer des résultats précédents, des conclusions sûres quant à l'acuité des problèmes de protection posés par les rejets de zinc-65 dans les eaux continentales. Cependant, en ce qui concerne les poissons contaminés directement à partir de l'eau, les valeurs des facteurs de transfert pour  $^{65}\text{Zn}$  trouvés à Ispra sont très nettement plus élevés que les valeurs correspondantes relatives au cobalt. On doit en outre remarquer que, en ce qui concerne le zinc-65, les valeurs résultant des expérimentations à Ispra sont inférieures aux valeurs trouvées " in situ ", soit pour le zinc stable, soit pour le zinc des effluents radioactifs ( mesures sur des poissons pêchés dans la Columbia River en aval du Centre de Hanford ). Il peut évidemment s'agir de différences imputables à la diversité des espèces. Cependant, une autre explication est possible : bien que le zinc-65 des aliments soit éliminé plus vite par le poisson que le zinc-65 provenant directement de l'eau, il est assez vraisemblable que la part relative de l'alimentation du poisson dans la contamination globale de l'organisme soit dans les conditions naturelles plus grande que celle de l'eau, l'aliment du poisson " concentrant " très intensément le zinc de l'eau. Il serait évidemment très intéressant de poursuivre les présentes études par celles de transferts plus complexes : eau  $\rightarrow$  aliments des poissons ( par exemple plancton )  $\rightarrow$  poissons.

.../...

## 2.3. Les transferts de la contamination radioactive à partir du sol -

Deux études sont actuellement en cours.

### 2.3.1. Comportement du $^{137}\text{Cs}$ dans le sol ( collaboration de MARCKWORTH, Division de la Biologie, Euratom-Ispra ) -

Les résultats obtenus à partir des " études verticales ", rapportés en 1969, présentaient une grande variabilité qu'on peut attribuer, d'une part, à des conditions particulières de climat, de saison, de technique culturale, et d'autre part, à l'influence du type de sol.

L'absorption du  $^{137}\text{Cs}$  par les plantes à partir du sol est incontestablement déterminée par sa disponibilité. Il convenait donc d'étudier comment varie la disponibilité du  $^{137}\text{Cs}$  en fonction des différents types de sol. Une étude a été entreprise dans ce but au laboratoire d'Ispra. Les sols étudiés sont ceux qui ont été prélevés pour l'étude verticale de la contamination, complétés par quelques échantillons provenant de l'étude dite " Eurosols ", poursuivie avec la collaboration de l'Association EUR-ITAL. Les sols ont été conditionnés avec une solution de  $\text{CaCl}_2$  contenant du  $^{134}\text{Cs}$  et ensuite traités avec une solution de nitrate de magnésium pour déterminer l'équilibre entre la solution et le sol. Le  $^{137}\text{Cs}$  disponible, c'est-à-dire non fixé, ainsi déterminé, a été mis en relation avec les teneurs en argile et en matière organique.

Pour l'ensemble des sols traités, on a trouvé la corrélation suivante :

$$\log \% \text{ Cs-disponible} = 0,9874 + 0,2099 \log \% \text{ matière organique} - 1,1479 \log \% \text{ argile.}$$

La corrélation entre  $\log \% \text{ argile}$  et  $\log \% \text{ matière organique}$  dans les sols, était négative sans être significative; d'autre part, on a constaté une corrélation positive et significative au seuil de 5% entre  $\log \text{ Cs-}^{137}\text{-disponible}$  et  $\log \% \text{ matière organique}$  et une corrélation négative et hautement significative ( 0,1% ) entre  $\log \text{ Cs-}^{137}\text{-disponible}$  et  $\log \% \text{ argile}$  dans les sols. La figure montre l'évolution de la disponibilité du Cs-134 pour des sols minéraux contenant 2,5% de matière organique, en fonction de leur teneur en argile.

La disponibilité ainsi déterminée permet d'estimer la valeur des facteurs de transfert sol-plantes pour le Cs-137 en fonction du type de sol. L'établissement d'une échelle de valeurs est actuellement en cours d'étude.

### 2.3.2. Etude de la contribution de l'horizon superficiel du sol à la contamination des prairies par le radiostrontium et le radiocésium ( collaboration de M. KIRCHMANN du Département de Radiobiologie à Mol ) -

Cette recherche amorcée en 1969 vise à étudier l'absorption du radiostrontium et du radiocésium par l'herbe à partir de deux sols de prairie permanente, riches en matière organique, en fonction du degré d'humidité des sols.

Une mauvaise reprise de la croissance de l'herbe après la première récolte oblige à répéter l'expérimentation en 1971, et à différer les conclusions concernant cette étude.



TROISIEME PARTIE

---

ETUDE DES CONTAMINATIONS CHIMIQUES ASSOCIEES AUX CONTAMINATIONS

---

RADIOACTIVES

Parmi les polluants chimiques associés aux contaminations radioactives, on a d'abord considéré le fluor et ses dérivés dans une première étude bibliographique.

### 3.1. Analyse des problèmes de protection posés par le fluor et les composés fluorés -

L'usage du fluor et des composés fluorés dans de très nombreux domaines des activités scientifiques et industrielles s'est considérablement accru : les quantités mises en oeuvre sont de plus en plus grandes, les produits fluorés utilisés, de plus en plus variés, les sites où ils sont employés tendent à être de plus en plus dispersés. Comme le fluor et beaucoup de ses dérivés sont toxiques pour l'homme et son environnement, on conçoit que ce développement pose des problèmes de protection dont l'acuité croît rapidement.

Parmi les causes possibles de pollution par le fluor et ses composés, figurent les activités nucléaires proprement dites, par exemple, l'élaboration de l'uranium nucléaire, l'élaboration du plutonium, celle du thorium, le traitement des combustibles irradiés, en particulier le retraitement par voie sèche. En ce qui concerne les activités associées, il faut citer l'usage fréquent du fluor et de ses dérivés dans les laboratoires de chimie et de physico-chimie des installations nucléaires, la préparation et le stockage des produits fluorants utilisés en énergie nucléaire, et même l'élaboration des métaux employés pour le gainage des combustibles. L'intérêt du fluor dans ces domaines l'a d'ailleurs fait retenir en premier lieu dans les études consacrées aux pollutions associées [6], mais il se retrouve également dans beaucoup de techniques de pointe, ce qui, évidemment, accroît encore l'intérêt actuel de cette question ; parmi ces techniques, figurent, par exemple, les utilisations du fluor en métallurgie (aluminium en particulier), dans l'industrie des plastiques, dans celle des "propellants" pour fusées et des propulseurs d'aérosols, dans celle des synthèses organiques et organo-minérales (pesticides en particulier). La fabrication de divers produits tels les ciments et les engrais implique en outre la possibilité d'une pollution de l'atmosphère en fluor.

Le rapport qui est en cours de publication [6] aborde divers aspects :

- les origines possibles d'une pollution du milieu par le fluor et ses composés,
- la nature biochimique des nuisances, notamment chez les animaux et l'homme ; il semble que le fluor soit responsable d'un blocage du cycle de Krebs, et que, à l'échelle moléculaire, la cause de toxicité soit la production de radicaux libres liée à une libération suffisante d'énergie pour rompre diverses liaisons covalentes ;
- la toxicité du fluor pour les végétaux, et d'une façon générale, le problème des bioindicateurs d'une pollution en fluor, l'apparition de symptômes de toxicité chez les espèces végétales les plus sensibles garantissent le respect des espèces végétales moins sensibles, et celle de la santé des animaux supérieurs et de l'homme,
- l'incidence de divers paramètres sur l'apparition des phénomènes de



toxicité ( paramètres de l'émission, paramètres propres aux divers polluants fluorés possibles, paramètres du milieu proprement dit ) ;

- la détermination de niveaux limites, pour le fluor et les dérivés fluorés, dans l'air, l'eau et les aliments : chaque fois qu'on a pu définir une quantité maximale ingérable soit pour l'homme, soit pour les gros animaux de ferme qui sont particulièrement sensibles, il semble possible de calculer des niveaux limites dans le milieu et les aliments en admettant certaines hypothèses concernant l'utilisation du milieu et l'ingestion d'aliment, et en utilisant le modèle proposé précédemment pour les pollutions radioactives et chimiques.

.../...



QUATRIEME PARTIE

---

ETUDES DE SYNTHESE

Deux études traitent des problèmes posés par l'évaluation des niveaux de contamination dans le cas d'une pollution du milieu aquatique, dans le domaine radioactif et dans le domaine non radioactif.

#### 4.1. Estimation des risques de contamination interne de l'homme résultant de la pollution radioactive des eaux -

Au cours de l'année 1970, le modèle dérivé de celui proposé par LEDERMANN et exposé dans un précédent rapport ( Rapport Annuel 1969 ) a été développé et précisé [4]. Basé sur des données d'ordres divers ( enquêtes alimentaires, expérimentations radioécologiques et données du contrôle, données radiophysologiques ), il permet d'exprimer les doses délivrées à l'homme du fait de l'ingestion d'aliments contaminés en raison de la pollution radioactive des eaux, D, en fonction des quantités ingérées Q de chaque aliment, des facteurs de transfert F de chaque radionucléide de l'eau à l'aliment et des niveaux de contamination, x, des eaux.

L'application de ce modèle permet de dégager un certain nombre de points importants qu'il importerait, au besoin, de préciser encore par des expérimentations :

- En ce qui concerne la consommation directe de l'eau comme eau de boisson, les radionucléides importants sont d'une part,  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{137}\text{Cs}$ , en raison de leur longue période physique, et, d'autre part, les radionucléides qui, par suite de leur comportement physico-chimique dans les effluents et les milieux de dispersion, peuvent échapper aux processus de décontamination intervenant avant utilisation des eaux par l'homme ; tel est, en particulier, le cas des radioruthéniums.
- En ce qui concerne les " aliments irrigués ", c'est-à-dire l'ensemble des aliments d'origine végétale ou d'origine animale pollués, directement ou indirectement, par les eaux d'irrigation, le problème est plus complexe. Il dépend en particulier de la nature des " aliments irrigués ", du type d'irrigation, des conditions de sol et de climat. Dans le cas d'une irrigation par aspersion, il importe de tenir compte à la fois des risques de contamination par le sol et des risques d'apports directs aux organes aériens des végétaux. Les radionucléides qui paraissent importants à envisager sont, en première analyse, le césium, le zinc et probablement le tritium.
- Dans le cas des chaînes aquatiques continentales,  $^{90}\text{Sr}$  et  $^{137}\text{Cs}$  constituent des radionucléides importants (  $^{90}\text{Sr}$ , surtout dans le cas d'eau pauvre en ions  $\text{Ca}^{++}$  ), mais d'autres radionucléides doivent être pris en considération, en particulier, les produits métalliques d'activation.
- Dans le cas des chaînes océaniques et marines, il faut envisager chacun des aliments susceptibles de transférer à l'homme les radionucléides parvenus à l'eau ; en particulier, les mollusques et crustacés et, éventuellement, les algues. Les radionucléides susceptibles de devenir critiques dans certaines éventualités sont assez nombreux et sont fonction de la nature, de l'origine des produits consommés, ainsi que, bien entendu, des quantités consommées ; mais il semble que le ruthénium et l'ensemble des produits métalliques d'activation soient les radionucléides les plus importants à considérer.

#### 4.2. Estimation des risques de contamination interne de l'homme résultant de la pollution chimique des eaux -

Les études relatives à la pollution radioactive des systèmes aquifères entrent dans le cadre général des études des conséquences de la pollution de l'environnement à la suite de rejets de substances toxiques, soit pour l'homme, soit pour les divers organismes présents dans le milieu. Il est évidemment intéressant d'étendre au domaine des transferts des pollutions chimiques des chaînes alimentaires aquatiques et irriguées de l'homme le modèle précédemment proposé dans le cas des pollutions radioactives. Parmi les pollutions chimiques, il est deux cas particuliers constituant des transitions normales entre les pollutions radioactives, d'une part, et les pollutions chimiques non radioactives, d'autre part. C'est d'abord celui des " pollutions associées ", pollutions non radioactives, mais impliquées en partie par le fonctionnement des installations nucléaires ; les pollutions par le fluor sont de ce type. C'est ensuite celui des pollutions par des éléments métalliques, dont certains radio-isotopes figurent parmi les produits d'activation, par exemple, le cobalt, le manganèse, le zinc, le chrome.

L'extension du modèle, brièvement rappelé précédemment, aux cas des pollutions chimiques des écosystèmes aquatiques a fait en 1970 l'objet d'une publication en cours [3] et de deux communications à des colloques [2-3]. Le modèle recourt à trois notions courantes dans le cadre de la protection radiologique des chaînes alimentaires:

- celle de dose délivrée, exprimée en unité d'énergie ( le rem ),
- celle de niveau de pollution du milieu, exprimée en unité de radio-activité ( picocurie ),
- celle, enfin, de facteur de transfert, exprimée en unité d'énergie délivrée aux tissus par unité de radioactivité.

L'extension du modèle " radioactif " aux cas des pollutions chimiques a d'abord nécessité d'étudier en quelle mesure ces notions sont transposables au domaine non radioactif.

. Notions de dose et de dose limite : il s'agit là de notions propres aux pollutions radioactives qui n'interviennent que par l'énergie que les rayonnements émis délivrent aux tissus, cette énergie étant caractéristique du polluant, en l'occurrence, le radionucléide, et ne dépendant pas de la forme physico-chimique des combinaisons dans lesquelles il est inclus. D'autre part, les doses d'irradiation provenant de divers radionucléides présents simultanément sont considérées comme additives dans la mesure où elles sont délivrées au même organe. Il a été alors possible en tenant compte des radionucléides, des tissus et des organismes, des risques acceptés pour les populations intéressées, de définir des doses limites d'irradiation pour les différents tissus et organes, quel que soit le radionucléide. En ce qui concerne les pollutions chimiques, les modalités d'atteinte de l'organisme sont très variées et le nombre des polluants possible est très grand. D'autre part, faute d'une unité commune, les nuisances ne sont pas additives. Il existe d'autre part des phénomènes de synergie et d'antagonisme encore incomplètement connus. Enfin, en ce qui concerne certaines pollutions chimiques organiques ( pesticides, en particulier ), les phénomènes de filiation entre polluants ne sont pas encore bien établis.

On conçoit donc qu'il soit difficile de fixer des limites aux quantités de toxiques chimiques que l'homme peut ingérer ; pourtant, on a défini des " doses journalières acceptables ", pour une absorption

prolongée, qui sont en fait des quantités maximales ingérables.

. Notion de facteur de transfert : Dans le cas des pollutions chimiques, on définit un facteur de transfert eau  $\rightarrow$  aliment comme le rapport entre la concentration d'un polluant déterminé dans l'aliment, d'une part, et dans l'eau, d'autre part.

. Niveaux de pollution : Aucune remarque particulière n'est à faire, si ce n'est qu'en ce qui concerne les toxiques minéraux, en particulier les métaux, il importe de connaître à la fois les concentrations totales dans l'eau de chaque polluant et l'évolution des structures chimiques dans lesquelles ils figurent.

Ces difficultés théoriques étant connues, il est possible de déduire pour un toxique chimique donné, les niveaux limites admissibles pour l'eau, de la même manière qu'on peut déduire de la dose maximale ingérable les niveaux limites dans l'eau de radionucléides en utilisant un modèle identique dans sa forme à celui qui a été proposé dans le cas des pollutions radioactives. Il faut insister sur le fait qu'en raison de l'absence d'unité commune des nuisances chimiques, chacun des polluants chimiques doit être envisagé séparément, ce qui, évidemment, rend le problème très vaste et très complexe. Aussi, est-il essentiel de rechercher en quelle mesure l'utilisation du modèle proposé peut permettre de définir des études prioritaires. Il apparaît, en particulier urgent, de tenter une classification des divers polluants chimiques basée sur des critères précis et simples de manière à ramener l'ensemble des problèmes à un certain nombre de cas-types.

.../...

## CONCLUSIONS

-----

Du bilan général des résultats obtenus au cours de l'année 1970, on peut tirer les conclusions suivantes :

En Biologie humaine, l'inventaire des paramètres anatomiques de l'homme européen est pratique achevé et fera l'objet d'une publication prochaine. L'étude des facteurs physiologiques et des modèles concernant l'iode et le strontium a fortement progressé. Pour le proche avenir, il est envisagé d'entreprendre l'étude de la composition minérale du corps humain, considérée comme référence indispensable pour les études de pollution.

Dans le domaine des transferts de la contamination, on peut considérer que l'étude des modèles de transfert des radionucléides considérés comme les plus importants pour la contamination de la chaîne alimentaire de l'homme, à savoir le strontium et le césium est en bonne voie de réalisation. Pour l'iode par contre, l'étude des problèmes posés par la contamination atmosphérique est à poursuivre par l'expérimentation.

L'étude des transferts du ruthénium, du cobalt et du zinc à partir des eaux continentales est très avancée. Elle sera suivie dans le programme suivant par l'étude du chrome, du fer, du manganèse, du tritium et du carbone-14.

Il est prévu d'aborder également les problèmes posés par les pollutions des mêmes radionucléides en milieu marin.

L'étude des pollutions chimiques associées aux pollutions radioactives, qui a été amorcée en 1970 avec le fluor et les composés fluorés, est à poursuivre avec l'étude de l'action des complexants et des solvants sur le comportement et le métabolisme de certains polluants minéraux tels que le mercure, le plomb, le cuivre, le zinc, etc....

Enfin, les méthodes d'approche des niveaux de contamination et d'estimation des niveaux critiques, mises au point par les éléments radioactifs, sont susceptibles de recevoir de multiples applications pour la détermination de niveaux de protection dans le domaine de la pollution non radioactive, mettant en cause la santé humaine.

ANNEXE I

ETABLISSEMENTS ET ORGANISMES PARTICIPANT AUX TRAVAUX  
DE L'ASSOCIATION

- CENTRE D'ETUDES DE L'ENERGIE NUCLEAIRE  
Département de Radiobiologie  
Mol-Donk ( Belgique )
- ASSOCIATION EURATOM/ITAL  
Instituut voor Toepassing van Atoomenergie in de Landbouw  
Oostereng Keyenbergsweg 6, Wageningen ( Pays Bas )
- UNIVERSITÀ DEGLI STUDI PAVIA  
Istituto d'Igiene e Microbiologica  
Viale Forlami 1, Pavia ( Italie )
- DIVISION BIOLOGIE EURATOM-ISPRA ( Italie )
- UNIVERSITE LIBRE DE BRUXELLES  
Laboratoire de Médecine Expérimentale  
Département de Pédiatrie - Ecole d'Hygiène  
Avenue Franklin D. Roosevelt , 1050 BRUXELLES ( Belgique )
- UNIVERSITE DE LILLE  
Ecole Supérieure de Chimie  
B.P. 40 , 59 Annappes ( France )
- SOCIETE UGINE KUHLMANN  
Département Recherches et Développement Atomiques  
95, Rue Danton , 92 Levallois ; 192 Grand'Rue , 92 Sèvres ( France )
- SERVICE D'HYGIENE ATOMIQUE  
EURATOM-ISPRA ( Italie )
- ISTITUTO TECNICO FEMMINILE MARGHERITA DI SAVOIA  
Via Panisperna 255, Rome ( Italie )
- ROYAL MARSDEN HOSPITAL BELMONT  
Medical Research Council  
Sutton, Surrey, Royaume Uni.



ANNEXE II

RAPPORTS PUBLIES EN 1970  
-----

- 1 Rapport annuel 1969 " Niveaux de contamination radioactive du milieu ambiant et de la chaîne alimentaire " EUR 4546 f
- 2 BITTEL R. et LACOURLY G.  
Pollution chimique des milieux aquatiques : perspectives nouvelles basées sur la notion de niveaux limites . ( Association française de Limnologie - Super Bessé , 23-25 Mai 1970 )  
CEA CONF 1622
- 3 BITTEL R. et LACOURLY G.  
Méthode d'approche pour l'évaluation des niveaux de pollution chimique, des milieux marins et des chaînes alimentaires marines , in "Revue Internationale d'Océanographie "( sous presse )
- 4 BITTEL R. et LACOURLY .  
Estimation des risques de contamination interne à l'homme résultant de la pollution radioactive des eaux - Radioprotection 1970 , 5(4) 281-291
- 5 BITTEL R., MERLINI M., MYTTENAERE C., RAYERA O.  
Etude des paramètres du transfert du radiocobalt dans les écosystèmes continentaux aquatiques irrigués - CEA R 4157 - EUR 4628 f
- 6 BITTEL R. et VAUBERT B.  
Analyse des problèmes de protection posés par le fluor et les composés fluorés - CEA - Série bibliographies ( à paraître )
- 7 BITTEL R. et VAUBERT B.  
Nuisances résultant de l'utilisation du fluor dans les installations nucléaires . 3ème Symposium européen sur la chimie du fluor - Aix en Provence 14-17 Sept 1970 -
- 8 GARNIER A.  
Etude des niveaux de contamination interne résultant d'une pollution de l'environnement par le 90 Sr et le 137 Cs - Influence des différents paramètres  
CEA R 3861 - EUR 4146 f .
9. KARHAUSEN L., PAGES J.P. , ERMANS A.M.  
Fate of iodine radioisotopes in infants and adolescents and resulting radiation exposure  
11° congrès International de l'A.I.R.P. , Brighton  
3-8 Mai 1970 -

RAPPORTS PUBLIES EN 1970 ( suite )  
-----

10 LACOURLY G, SAVY C, LEHR J, KIRCHMANN R.

Relations entre la contamination de la viande de bovin  
et celle du lait par le radioceesium ( Sous presse )

11 LEHR J.

Recherches dans le cadre de l'analyse verticale - Détermination  
des taux de passage sol/plante et sol/lait dans différents  
pays de la Communauté Européenne . ( sous presse )

12 VAUBERT B. et BITTEL R.

Contribution à l'étude des nuisances relatives au tritium  
CEA-BIB 182 - EUR 4522 f

#### AVIS AU LECTEUR

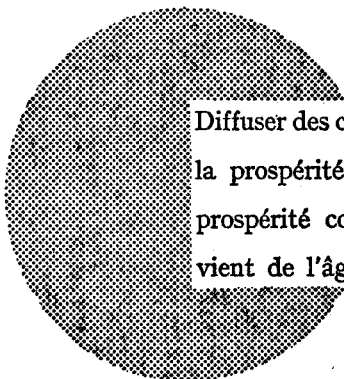
Tous les rapports scientifiques et techniques publiés par la Commission des Communautés Européennes sont signalés dans le périodique mensuel «euro-abstracts».

Pour souscrire un abonnement (1 an : FF 91,-, FB 820,-) ou recevoir un numéro spécimen, prière d'écrire à :

**Handelsblatt GmbH**  
**«euro-abstracts»**  
**D-4 Düsseldorf 1**  
**Postfach 1102**  
**Allemagne**

ou à

**Office des Publications Officielles**  
**des Communautés Européennes**  
**Case Postale 1003 - Luxembourg 1**



Diffuser des connaissances c'est distribuer de la prospérité — j'entends la prospérité collective et non la richesse individuelle — et cette prospérité contribue largement à la disparition du mal qui nous vient de l'âge des ténèbres.

Alfred Nobel

## BUREAUX DE VENTE

Tous les rapports publiés par la Commission des Communautés Européennes sont vendus dans les bureaux suivants, aux prix indiqués au verso de la première page de couverture. Lors de la commande, bien indiquer le numéro EUR et le titre du rapport qui figurent sur la première page de couverture.

### OFFICE DES PUBLICATIONS OFFICIELLES DES COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES

Case Postale 1003 - Luxembourg/gare  
37, rue Glesener, Luxembourg (Compte chèque postal N° 191-90)

#### BELGIQUE — BELGIË

MONITEUR BELGE  
Rue de Louvain, 40-42 - B-1000 Bruxelles  
BELGISCH STAATSBAD  
Leuvenseweg 40-42 - B-1000 Brussel

#### LUXEMBOURG

OFFICE DES  
PUBLICATIONS OFFICIELLES DES  
COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES  
Case Postale 1003 - Luxembourg 1

#### DEUTSCHLAND

VERLAG BUNDESANZEIGER  
Postfach 108 006 - D-5 Köln 1

#### NEDERLAND

STAATSDRUKKERIJ  
en UITGEVERIJBEDRIJF  
Christoffel Plantijnstraat - Den Haag

#### FRANCE

SERVICE DE VENTE EN FRANCE  
DES PUBLICATIONS DES  
COMMUNAUTÉS EUROPÉENNES  
rue Desaix, 26 - F-75 Paris 15°

#### UNITED KINGDOM

H. M. STATIONERY OFFICE  
P.O. Box 569 - London S.E.1

#### ITALIA

LIBRERIA DELLO STATO  
Piazza G. Verdi, 10 - I-00198 Roma

Commission des  
Communautés Européennes  
D.G. XIII - C.I.D.  
29, rue Aldringen  
L u x e m b o u r g